

# エピタキシャルPt薄膜におけるスピン緩和とスピン軌道トルク

著者	柳 淀春
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	11301甲第18128号
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/00125246">http://hdl.handle.net/10097/00125246</a>

平成 29 年度 博士論文

# Spin relaxation and Spin-Orbit torque in Epitaxial Pt Thin Films

エピタキシャル Pt 薄膜におけるスピン緩和とスピン軌道トルク

東北大学大学院工学研究科  
知能デバイス材料学専攻 新田研究室  
B5TD5314 柳 淀春(Jeongchun Ryu)



TOHOKU  
UNIVERSITY



# Layout

<b>1. INTRODUCTION OF SPINTRONICS .....</b>	<b>1</b>
1.1 OBJECTIVE OF THIS THESIS .....	3
1.2 LAYOUT OF THIS THESIS .....	3
<b>2. SPIN-ORBIT INTERACTION AND ITS RELATED PHENOMENA.....</b>	<b>7</b>
2.1 SPIN-ORBIT INTERACTION.....	7
2.2 SPIN RELAXATION .....	14
2.3 SPIN-ORBIT TORQUE.....	17
<b>3. METHODS FOR DEVICE FABRICATION AND CRYSTALLOGRAPHIC EVALUATION.....</b>	<b>27</b>
3.1 DEVICE FABRICATION .....	27
3.2 CRYSTALLOGRAPHIC EVALUATION .....	30
<b>4. EPITAXIAL GROWTH OF PT THIN FILM AND DEPOSITION OF PERPENDICULARLY MAGNETIZED CO/PT BILAYER DEPENDING ON PT CRYSTAL STRUCTURE .....</b>	<b>37</b>
4.1 EPITAXIAL GROWTH OF PT THIN FILM .....	37
4.2 DEPOSITION OF PERPENDICULARLY MAGNETIZED Co/Pt BILAYER DEPENDING ON PT CRYSTAL STRUCTURE .....	47
<b>5. MAGNETORESISTANCE MEASUREMENT FOR QUANTITATIVE EVALUATION OF SPIN RELAXATION AND SPIN ORBIT TORQUE .....</b>	<b>55</b>
5.1 WEAK ANTILOCALIZATION.....	55
5.2 HARMONIC VOLTAGE MEASUREMENT .....	68
<b>6. SPIN RELAXATION MECHANISM DEPENDING ON PT CRYSTAL STRUCTURE AND THICKNESS .....</b>	<b>77</b>
6.1 TRANSPORT PROPERTY.....	78
6.2 QUANTUM INTERFERENCE EFFECT .....	85
<b>7. SPIN ORBIT TORQUE IN PT/CO BILAYER SYSTEM DEPENDING ON PT CRYSTAL STRUCTURE.....</b>	<b>99</b>
7.1 HARMONIC MEASUREMENT AT LOW MAGNETIC FIELD .....	101
7.2 ASYMMETRIC CONTRIBUTION TO HALL EFFECT IN Pt/Co(S).....	107
7.3 HARMONIC MEASUREMENT AT HIGH MAGNETIC FIELD.....	112
7.4 CURRENT INDUCED MAGNETIZATION SWITCHING BY SPIN ORBIT TORQUE.....	123
<b>8. TEMPERATURE DEPENDENCE OF SPIN ORBIT TORQUE IN PT/CO(S) .....</b>	<b>129</b>
8.1 TRANSPORT AND MAGNETIC PROPERTY .....	130
8.2 TEMPERATURE DEPENDENCE OF HARMONIC MEASUREMENT AT HIGH MAGNETIC FIELD .....	131
<b>9. CONCLUSIONS AND OUTLOOK .....</b>	<b>135</b>





# 1. Introduction

電子は電荷 $| -e| = e$ を有する素粒子であるが、スピン角運動量というもう一つの内部自由度を有している。粒子の軌道角運動量には $\hbar$ の整数倍で量子化される。これに対し、スピン角運動量は $\hbar/2$ の値に量子化されている。すなわち、電子のスピン軌道運動量の  $z$  成分 $S_z$ は $\pm\hbar/2$ となる。スピン角運動量に対応する古典的物理量はないが、あえてイメージするならば左回り、右回りの自転とでもいうべきものである。電子の電荷は常に一定であるものの、スピンには $S_z = +\hbar/2$  ( $\uparrow$  スピン)、または $S_z = -\hbar/2$  ( $\downarrow$  スピン)のどちらかをとる自由度があることになる[1]。

従来のエレクトロニクスでは、電荷の自由度を用いてきた。この情報デバイスとして、半導体を基盤とするトランジスタ(集積回路)が挙げられる。一方、`スピン`という自由度は磁性をもたらし、不揮発性メモリとして磁性材料から応用されてきた。現代文明の発展はエレクトロニクスの発展に大きく依存し、ムーアの法則に従いこの 40 年程度で著しく成長してきた[2]。しかし従来の微小加工技術は原子レベルに到着し、1998 年をピークとして成長速度は遅くなりつつある[3]。このような原子スケールの系ではメゾスコピックな現象が顕著となるため、新たな動作原理に基づいた新規デバイスの実現が必要となる。従って、従来のエレクトロニクスの「電荷制御技術」に「スピン制御技術」を融合する次世代技術への期待は大きく、これからの情報社会の基盤を担う学問であるといえる[4-6]。

その次世代技術として、スピントロニクス(spintronics)が挙げられている。スピントロニクスとは電子の有する`電荷`と`スピン`という二つの自由度を積極的に利用し、新たな情報デバイスを構築しようとする学問である。その先駆的研究として、2007 年ノーベル賞を受賞につなげた 1980 年代の後半に Fert ら[7]及び Grünberg ら[8]によって発見された巨大磁気抵抗効果(Giant Magnetoresistance: GMR)が挙げられる。この現象は初めてスピンに依存した伝導を実験的に示した先駆的な研究となり、スピントロニクス分野の発現をもたらした。

GMR の発見以来、スピントロニクスは多くの研究者によって様々な研究が行われ、約 40 年も至らない間著しく成長してきた。スピントロニクスの中心的な概念にはスピン軌道相互作用(spin-orbit interaction :SOI)があり、電子が運動中に感じる有効磁場を表す。この SOI によって電子は外部磁場がない状態でも磁場が存在するように振る舞うことになる。半導体におけるスピントロニクス分野では SOI のメカニズムを積極的に利用し[9,10]、スピンを制御に関する深い理解やその技術飛躍的發展が行われた。半導体の量子井戸構造が持つ体系的なポテンシャル構造の設計や低温において非常に長い平均自由工程の利点を用いることで、電氣的にスピンの状態を制御することに達成した[11-16]。この技術を強磁性体と組み合わせることで、スピンの注入—制御—検出という一連の構造を作ることができ、スピントロニクスデバイスの代表的な例となるスピントランジスタが得られる。しかし室温動作に挙げると熱揺らぎによるスピンの制御が困難であることは課題として残されている。更に、強磁性体と半導体の電気伝導

度は大きく異なり、強磁性体から半導体に注入したスピンの大きな化学ポテンシャル差をもたらすことは難しいと知られている[17]。この問題を解決するために強磁性体 / 半導体界面にトンネルバリアー(Tunnel barrier) やショットキーバリアー(Schottky barrier)を用いる方法[18-20]、スピンドリフト拡散(Spin-drift diffusion)を導入する方法[21, 22]などが行われているが、まだ課題として残っている。またドレイン側の強磁性体におけるスピン検出もショットキーバリアーを用いた構造で行われたが、室温では検出率が 6%に格段に下がるという短所が挙げられる[23]。

一方、金属におけるスピントロニクスでは SOI によって生じるスピンホール効果 (spin Hall effect:SHE)を中心に様々な研究が行われてきた[24-30]。金属の場合室温でも強い SOIを示すことから、非磁性体(Heavy metal:HM)/強磁性体(Ferromagnetic metal:FM)となるバイレイヤー構造を作ることによって非磁性体層から得られる SOI を用いて強磁性体層における磁化を制御できることが報告された。これはスピン軌道トルク (spin orbit torque:SOT)と名付けられ、SOT を用いると外部磁場が小さい(もしくはゼロ磁場でも)環境でも磁化の状態を制御することができるため、SOT-MRAM (SOT-Magnetoresistive Random Access Memory)などのメモリデバイスとしての応用が期待されている。従って近年 SOT の起源や材料による定量的な評価が活発に研究されている。しかしながら、現在まで報告されている金属の SOI は、測定方法及び試料構造などにより大きな違いを示している。例えば、同じ Pt であっても SOI の強さを表す指標であるスピンホール角 (spin Hall angle :  $\theta_{SHE}$ ) やスピン緩和長 (spin relaxation length:  $L_{so}$ ) は一桁以上異なる広い幅の値が推定されている ( $\theta_{SHE}$ : 0.012-0.37,  $L_{so}$ : 1.5-11nm ) [24, 29-37]。その原因としては、金属における SOI のメカニズムが明確にされていないため、測定方法及び試料構造によって生じる SOI が異なると考えられる。特に金属で生じる SHE は散乱基ついた外因性 SOI が支配的であると考えられてきたが、近年の研究ではバンド構造や界面構造に由来する内因性 SOI が存在する可能性があることが報告されている[24,38,39]。従って金属を用いたスピントロニクスデバイスの実現には、SOI のメカニズムを明確に理解する上でより効率的なエンジニアリングが可能となる。更に、メカニズムの深い理解は SOI の制御にもつながるため、半導体スピントロニクスが抱えている課題が金属を用いることで解決できる可能性を示す。

## 1.1 Objective of the thesis

本研究では金属スピントロニクスにおける基礎物理の理解と共にデバイスとしての応用可能性を提案することを目標とする。まず基礎物理に関しては、スピン緩和メカニズムを調べることにより金属内の SOI の深い理解が得られることである。次に、基礎物理の知見を拡張することで金属におけるスピン制御の可能性を示すことができ、スピントロニクスデバイスへの基盤技術を提案することを目指す。

以上の目標から、Pt の結晶性に注目し、エピタキシャル成長された Pt における SOI のメカニズムの解明及び SOT の評価を行った。

Pt をエピタキシャル構造にすることで外因性 SOI が抑制されると予想されることから、極低温におけるスピン緩和の結晶依存性を調べ、そのメカニズムを明確にする。本実験は金属系における SOI の起源を明らかにする重要な意義を持つ。

次に、スピン緩和の実験から得られた知見を室温に拡張するために、Pt の結晶性が異なる垂直磁気異方性を有する Pt/Co バイレイヤー構造を作り、結晶性による SOT の評価を行う。この研究によって結晶性による SOI の違いがスピントロニクスデバイスへの応用される可能性を探る。

## 1.2 Layout of the thesis

本論文は本章の導入部を第 1 章とし、全体で 9 章として構成されている。

第 2 章：本研究の行う上で重要な概念となる SOI を紹介し、その起源及び関連した物理現象について説明する。

第 3 章：試料作成及び結晶評価に用いた装置や測定原理に関し簡単に述べる。

第 4 章：単結晶 Pt の成長及び Pt 結晶性による垂直磁気異方性を有する Pt/Co バイレイヤー構造の成膜について説明する。

第 5 章：本研究で用いた実験の説明を行う。スピン緩和の評価に適用した量子干渉効果や SOT の評価のためのハーモニック測定法が主に記述される。

第 6 章：Pt の結晶性及び膜厚によるスピン緩和やそのメカニズムについて考察する。

第 7 章：Pt 結晶性による垂直磁気異方性を有する Pt/Co 構造の SOT の実験や結晶性から起因する違いについて議論する。

第 8 章：第 6 章で得られた極低温におけるスピン緩和の結果と第 7 章で求めた SOT の知見をつなげるために、単結晶 Pt/Co の SOT の温度依存性について探る。

第 9 章：本研究から得られた知見を取りまとめる。

## Reference

- [1] スピントロニクス、井上順一郎・伊藤博介、共立出版 (2010).
- [2] G. Moore, Proceedings of the IEEE, **86**, 1( 1998) ; Reprinted from G. Moore, “Cramming More Components onto Integrated Circuits,” *Electronics*, pp. 114–117, April 19, 1965.
- [3] M. Hilbert and P. López, *Science*, **332**, 60–65 (2011).
- [4] I. Žutić, J. Fabian, S. Das Sarma, *Rev. Mod. Phys.*, **76**, 323 (2004).
- [5] Concepts in spin electronics, S. Maekawa, Oxford University Press (2006).
- [6] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger, *Science*, 294, 1488 (2001).
- [7] Peter Grünberg, R Schreiber, Y Pang, MB Brodsky, and H Sowers, *Phys. Rev. Lett.*, **57**, 2442 (1986).
- [8] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2472 (1988).
- [9] E. I. Rashba, *Sov. Phys. Solid State* **2**, 1224 (1960).
- [10] G. Dresselhaus, *Phys. Rev.* **100**, 580 (1955).
- [11] J. Nitta, T. Akazaki, H. Takayanagi, and T. Enoki *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1335 (1997).
- [12] M. Kohda, V. Lechner, Y. Kunihashi, T. Dollinger, P. Olbrich, C. Schönhuber, I. Caspers, V. V. Bel'kov, L. E. Golub, D. Weiss, K. Richter, J. Nitta, and S. D. Ganichev, *Phys. Rev. B* **86**, 081306(R) (2012).
- [13] Y. Kunihashi, M. Kohda, H. Sanada, H. Gotoh, T. Sogawa, and J. Nitta, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 113502 (2012).
- [14] J. B. Miller, D. M. Zumbühl, C. M. Marcus, Y. B. Lyanda-Geller, D. Goldhaber-Gordon, K. Campman, and A. C. Gossard. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 076807 (2003).
- [15] A. Sasaki, S. Nonaka, Y. Kunihashi, M. Kohda, T. Bauernfeind, T. Dollinger, K. Richter and J. Nitta, *Nat. Nano.* **9**, 703 (2014).
- [16] L. Meier, G. Salis, I. Shorubalko, E. Gini, S. Schön and K. Ensslin, *Nature Phys.* **3**, 650 (2007).
- [17] M. Studer, G. Salis, K. Ensslin, D. C. Driscoll, and A. C. Gossard, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 027201 (2009).
- [18] G. Schmidt, D. Ferrand, L. W. Molenkamp, A. T. Filip, and B. J. van Wees, *Phys. Rev. B* **62**, R4790 (2000).
- [19] E. I. Rashba, *Phys. Rev. B* **62**, R16267 (2000).
- [20] D. L. Smith, and R. N. Silver, *Phys. Rev. B*, **64**, 045323 (2001).
- [21] A. Fert, and H. Jaffres, *Phys. Rev. B*, **64**, 184420 (2001).
- [22] Yu, Z. G. and M. E. Flatte, *Phys. Rev. B*, **66**, 201202 (2002).
- [23] Yu, Z. G. and M. E. Flatte, *Phys. Rev. B*, **66**, 235302 (2002).
- [24] C. Adelman, X. Lou, J. Strand, C. J. Palmstrom, and P. A. Crowell, *Phys. Rev. B*, **71**, 121301(R) (2005).
- [25] I. M. Miron et al., *Nat. Mater.* **9**, 230 (2010); I.M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, and P. Gambardella, *Nature (London)* **476**, 189 (2011).

- [25] L. Liu, O. J. Lee, T. J. Gudmundsen, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Phys. Rev. Lett. 109, 096602 (2012).
- [26] M. Yamanouchi, D. Chiba, F. Matsukura, and H. Ohno, Nature (London) 428, 539 (2004).
- [27] T. Koyama et al., Nat. Mater. 10, 194 (2011).
- [28] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, Science 306, 1910 (2004).
- [29] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, and S. Maekawa, Phys. Rev. Lett. 98, 156601 (2007).
- [30] M. Morota, Y. Niimi, K. Ohnishi, D. H. Wei, T. Tanaka, H. Kontani, T. Kimura, and Y. Otani, Phys. Rev. B 83, 174405 (2011).
- [31] K. Ando et al., J. Appl. Phys. 109, 103913 (2011).
- [32] M. Weiler et al., Phys. Rev. Lett. 111, 176601 (2013).
- [33] V. Castel, N. Vlietstra, J. B. Youssef, and B. J. V. Wees, Appl. Phys. Lett. 101, 132414 (2012).
- [34] Z. Qiu, K. Ando, K. Uchida, Y. Kajiwara, R. Takahashi, H. Nakayama, T. An, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, Appl. Phys. Lett. 103, 092404 (2013).
- [35] M. Althammer et al., Phys. Rev. B 87, 224401 (2013).
- [36] H. Nakayama, K. Ando, K. Harii, T. Yoshino, R. Takahashi, Y. Kajiwara, K. Uchida, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, Phys. Rev. B 85, 144408 (2012).
- [37] Y. Niimi, D. Wei, H. Idzuchi, T. Wakamura, T. Kato, and Y. Otani, Phys. Rev. Lett. 110, 016805 (2013).
- [38] G. Y. Guo, S. Murakami, T.-W. Chen, and N. Nagaosa Phys. Rev. Lett. **100**, 096401 (2008)
- [39] Nguyen H. Long, Phivos Mavropoulos, David S. G. Bauer, Bernd Zimmermann, Yuriy Mokrousov, and Stefan Blügel Phys. Rev. B **94**, 180406(R) (2016)



## 2. Spin-orbit interaction and its related phenomena

本章ではスピントロニクスの中核的な概念となるスピン軌道相互作用 (Spin-orbit interaction :SOI) について紹介し、SOI が現れる環境(内因性、外因性 SOI)について述べる。次に、SOI から由来する代表的な物理現象であり、また本論文で注目している物理現象となるスピン緩和(Spin relaxation)及びスピン軌道トルク (Spin-orbit torque:SOT)について紹介する。

### 2.1 Spin-orbit interaction

電子(電荷 $-e$ ;  $e > 0$ )が電荷  $Ze$  の原子核から距離  $r$  のところを速度  $\mathbf{v}$  で回っているとする(Fig. 2.1 (a))。電子が静止した座標系では、電子の周りを原子核が速度  $-\mathbf{v}$  で回っているように見える(Fig. 2.1 (b))。原子核の運動の作る環状電流が電子の位置に作る磁場は、ビオ・サバールの法則より

$$\mathbf{B} = \frac{\mu_0}{4\pi} Ze \frac{\mathbf{r} \times \mathbf{v}}{r^3} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{Ze \hbar \mathbf{l}}{m r^3} \quad (2.1)$$

ここで、 $\mu_0$ は誘電率、 $\hbar \mathbf{l} = m \mathbf{r} \times \mathbf{v}$  は角運動量である。一方、電子のスピン  $\mathbf{s}$  は磁気モーメント( $\mu_B = e \hbar / (2m)$  はボーア磁子、 $g$  因子は 2 とする)

$$\mu_s = -2\mu_B \mathbf{s} \quad (2.2)$$

を持つので、磁場中のエネルギーとして

$$\mu_B \cdot \mathbf{B} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{Ze \hbar}{m r^3} (\hbar \mathbf{l} \cdot \mathbf{s}) \quad (2.3)$$

この式は電子の感じる電場

$$\mathbf{E} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Ze \mathbf{r}}{r^2} \quad (2.4)$$

またはポテンシャル  $U$  (力  $\mathbf{F} = -e\mathbf{E} = -\nabla U$ ) を用いると

$$H_{SO} = \frac{-e\hbar}{2m^2c^2} \mathbf{s} \cdot (\mathbf{p} \times \mathbf{E}) = \frac{\hbar}{4m^2c^2} \sigma \cdot (\mathbf{p} \times \nabla U) \quad (2.5)$$

のように変形される。ここで  $c = 1/\sqrt{\mu_0\epsilon_0}$  は光速、 $\sigma$  はパウリ行列  $\mathbf{s} = (1/2) \boldsymbol{\sigma}$  であり、上式は真空中での SOI の一般的な表式で、ディラック方程式から導かれる。原子の場合に限らず、電場中において電子のスピンは有効磁場を感じ、SOI が働く。しかし SOI は相対論的効果であり、原子番号  $Z$  が大きい原子の場合を除くと非常に小さい[1, 2]。SOI が強いと言われて材料としては Pt, W, Ta 及び Ir など 4d や 5d 軌道を持つ遷移金属が挙げられる[3-12]。



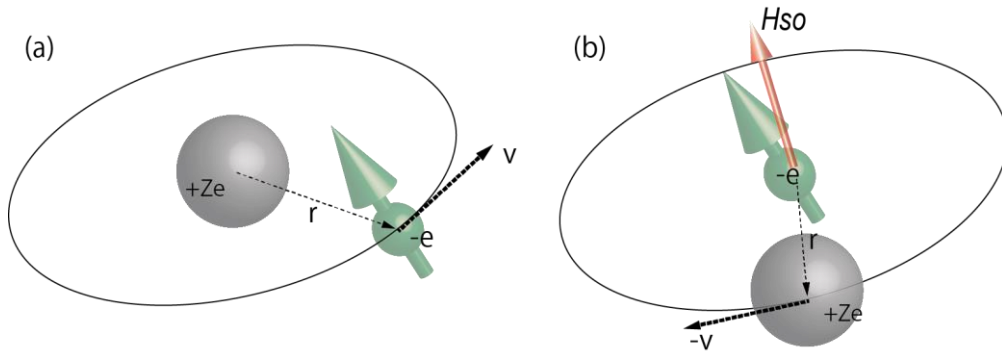


Fig. 2. 1 Schematic illustration of the spin-orbit interaction. (a) describes the motion of electron from the perspective of nucleus which of classical physics. (b) shows the motion of nucleus from the perspective of electron. The orbit around electron creates  $H_{so}$  field which gives rise to SOI.

それから、働く電場の形によって電子が感じる SOI は異なる。代表的なものとして、内因性 SOI (intrinsic SOI) と外因性 SOI (extrinsic SOI) に分けられる。内因性 SOI には、構造反転対称性が破れた系 (Structure Inversion Asymmetry) から生じる Rashba SOI と結晶反転対称性が破れた系 (Crystallographic Inversion Asymmetry) からなる Dresselhaus SOI が挙げられる。外因性 SOI はフォノンや不純物による散乱で生じる SOI として定義される。それぞれに関して以下の項目で詳しく説明する[2]。

### 2.1.1 Intrinsic SOI

- Rashba SOI

先ほどの SOI の説明で、原子番号  $Z$  が小さい原子の場合を除くと小さいと述べた。しかし、内部効果によって電子は電場(あるいはポテンシャル勾配)を受ける可能性が十分考えられる。例えば、半導体のヘテロ構造における伝導帯の不連続性と関連したときは内部電場が生じる。また外部電場を与えることも SOI を強調する一つの因子となる。この主張は 1960 年 E. I. Rashba によって提案され[13]、構造反転対称性が破れている系(つまりポテンシャル勾配が存在する系)で生じる SOI を Rashba SOI と呼んでいる。

あるベクトル  $\vec{A}, \vec{B}, \vec{C}$  の間では

$$(\vec{A} \times \vec{B}) \cdot \vec{C} = -\vec{A} \cdot (\vec{C} \times \vec{B}) \quad (2.6)$$

の関係が成り立つ。従って、Eq. (1.7)においても

$$H_{SO,R} = \frac{\hbar}{4m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} \times \nabla U) = \frac{-\hbar}{4m^2c^2} \nabla U \cdot (\boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{p}) \quad (2.7)$$

と書き換えることができる。 $\mathbf{p}$  は波数  $\mathbf{k}$  との関係で表すこともできるので Rashba SOI

の各成分は $\sigma \times \mathbf{k}$ と $\nabla U$ によって決まる。例えば $\nabla U$ が  $z$  方向に電場が働いていて  $xy$  平面内に電子が運動しているとする

$$H_{SO,R} = \alpha(k_y\sigma_x - k_x\sigma_y) \quad (2.8)$$

ここで $\alpha$ は

$$\alpha = \frac{-\hbar}{4m^2c^2} \quad (2.9)$$

となる。Eq. (2.7) と Eq. (2.8) に記述した内容をもとに Rashba SOI が作る有効磁場を表すと、Fig. 2. 1 (b) となる。また Eq. (2.7) のように、 $H_{SO,R}$  は $\nabla U$  に比例する。従って Rashba SOI は外部電場によって SOI を制御できると予想される。1997 年 Nitta らによって半導体のヘテロ構造が持つ 2 次元電子ガス系(2 Dimensional electron gas:2DEG)において Rashba SOI の外部電場による制御が初めて実証され[14]、半導体のシステムでは外部電場による SOI の制御に関する研究が多くなされている[15-21]。

また金属—酸化物あるいは金属—金属の界面で形成される電場が Rashba SOI を生み出すことが期待される。2011 年、金属界面における Rashba SOI に関する報告が発表され[22]、近年金属材料において盛んに研究されている。これに関する内容は、2.3 で SOT と関連付け詳しく述べる。

#### • Dresselhaus SOI

Dresselhaus SOI とは結晶反転対称性が破れた系で生じる内部電場が作り出す SOI である。これは 1954 年に G. Dresselhaus によって提唱されたため Dresselhaus SOI と名付けられている[23]。一般的に 3-5 族化合物半導体では結晶反転対称性が破れているため、結晶が作る電場に起因した SOI が働く。Dresselhaus スピン軌道相互作用の導出はややこしく、詳しい過程は[23]の参考文献を参考にしてほしい。結果だけのべると

$$H_{SO,D} = \gamma(\sigma_x k_x(k_y^2 - k_z^2) + \sigma_y k_y(k_z^2 - k_x^2) + \sigma_z k_z(k_x^2 - k_y^2)) \quad (2.10)$$

ここで $\gamma$  は物質固有のパラメータである。いま[001]方向に成長したヘテロ構造における 2 次元電子系を考え、波動関数の  $z$  方向の広がりについて平均をとると

$$H_{SO,D} = \gamma \langle k_z^2 \rangle (-\sigma_x k_x + \sigma_y k_y) + \gamma(\sigma_x k_x k_y^2 - \sigma_y k_y k_x^2) \quad (2.11)$$

のように書き換えることができる。Eq (2.11)からみると面内の波数に対して 1 次の項と 3 次の項が存在することが分かる。1 次の項の大きさを表すパラメータとして $\beta = \gamma \langle k_z^2 \rangle$ として定義すると

$$H_{SO,D} = \beta(-\sigma_x k_x + \sigma_y k_y) + \gamma(\sigma_x k_x k_y^2 - \sigma_y k_y k_x^2) \quad (2.12)$$

となる。通常 Dresselhaus SOI は量子井戸幅依存性を示し、ワイドバンドギャップ半導

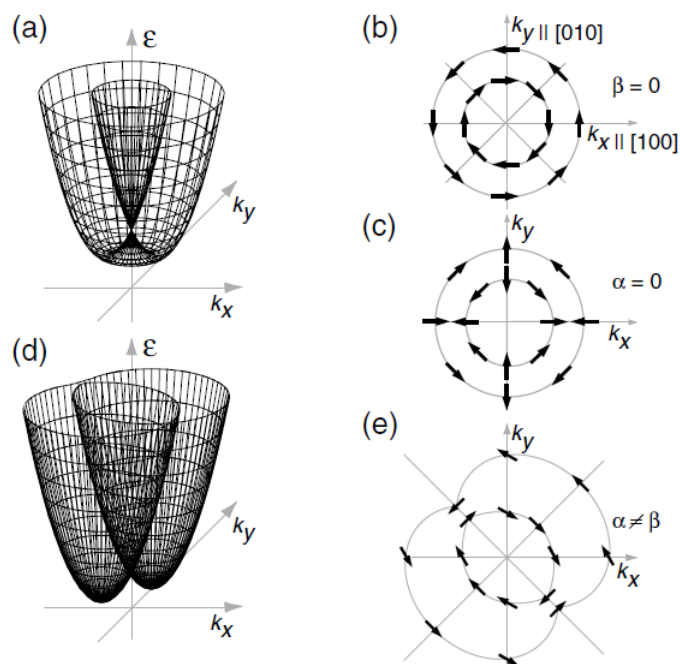


Fig. 2. 2 Schematic 2D band structure for different relative strength of the Rashba and Dresselhaus terms and the distribution of the spin orientations at the 2D Fermi energy: (a) is the case of the only Rashba or Dresselhaus SOI. (d) The case of the simultaneous presence of both contributions. (b), (c) and (e) indicates orientation of effective magnetic field in the presence of (b) only Rashba SOI, (c) only Dresselhaus SOI and (e) both terms. Graphics have taken from [26].

体において支配的である。また半導体だけに限らず、wurtzite材料における報告が発表されており[24]、金属においても結晶構造が整った場合有限な Dresselhaus SOI が存在する可能背がある。

[001]方向における Dresselhaus SOI が作る有効磁場は Fig. 2. 3 (c) で表される。結晶構造及び  $\mathbf{k}$  が決まると Dresselhaus SOI は一定値を示し、変調することは難しい。

半導体のヘテロ構造で作られる 2DEG では Rashba SOI と Dresselhaus SOI に存在するため(Fig. 2. 3 (e))、決まった Dresselhaus SOI を考え Rashba SOI を電場で制御することで全体の有効磁場を制御し、スピンを制御する試みがなされている[15-21, 25]。

## 2.1.2 Extrinsic SOI

Extrinsic SOIは、電子の進行中に受ける散乱によって生じるSOIとして定義される。散乱の媒体は不純物、結晶粒界やフォノンなどが考えられる。定義によってはフォノン散乱が Intrinsic SOI として考えられる場合もあるが、本論文では 2.2.1 での述べた内容と区別するため散乱によって起きる SOI は全て Extrinsic SOI として扱う。Extrinsic SOIはスピンホール効果(Spin Hall effect: SHE)を中心に多くの研究が行われており、遷移金属が示す大きな SOI の起源であると知られている。ここでは SHE に関して簡単に説明し、Extrinsic SOI の主要なメカニズムであるスキュー散乱(skew scattering: SK)とサイドジャンプ(side jump: SJ)について述べる。

- Spin Hall effect

SOI の特徴は、Eq(2.5)からわかるように、電子スピンの反転すると相互作用項の符号が反転し、また電子の運動方向を逆向きにしても符号が反転することである。このとき、電子の軌道運動が SOI の結果により曲げられた場合、電子スピンの向きと印加電流の方向によってその運動が変化すると考えられる。これを利用すると、SHE と逆スピンホール効果(inverse spin Hall effect: ISHE)が理解できる。例えば、Fig. 2. 3(a) のように非磁性体に電流を流す場合を考える。非磁性体では電流にすべての方向のスピンのをもつ電子が等しく含まれている。この時、互いに逆向きのスピンをもった電子はそれぞれの逆向きに曲げられる。この現象を電流に垂直な方向に注目すると、電流に垂直な方向に互いに逆向きのスピンの電子が逆方向に流れているので、電流に垂直な方向にスピン流が流れていることになる。このように非磁性体中に電流をそれに垂直方向のスピン流に変換するのが SHE である[27, 28]。ここで、印加電流からスピン流に変換される効率をスピンホールアングル(spin Hall angle,  $\theta_{SHE}$ )と定義する。但し、SHE ではそれぞれ反対のスピンの向きを持つスピン流が反対方向に流れるため、起電力としては取り出せない。従って SHE のみであると定量的な SOI の評価が困難であるため、ISHE と呼ばれる SHE の逆効果が利用される。FM から NM に伝導電子スピン流を注入されたとする。スピン流が流れているときは Fig. 2. 3(b) のように互いに逆向きスピンの電子が逆向きに流れる傾向にある。これらの電子は SOI によって同じ方向に曲げられる。これは、スピン流と垂直方向に電流、起電力が発生することを表す。この機構によって、スピン流をそれと垂直な方向の電流や電圧に変換することができる。

以上の SHE や ISHE の原理を用いることで、金属中に現れる SOI に関する多くの研究が行われ[29-45]、以下の二つの現象が Extrinsic SOI を構成するメカニズムとして考えられている。

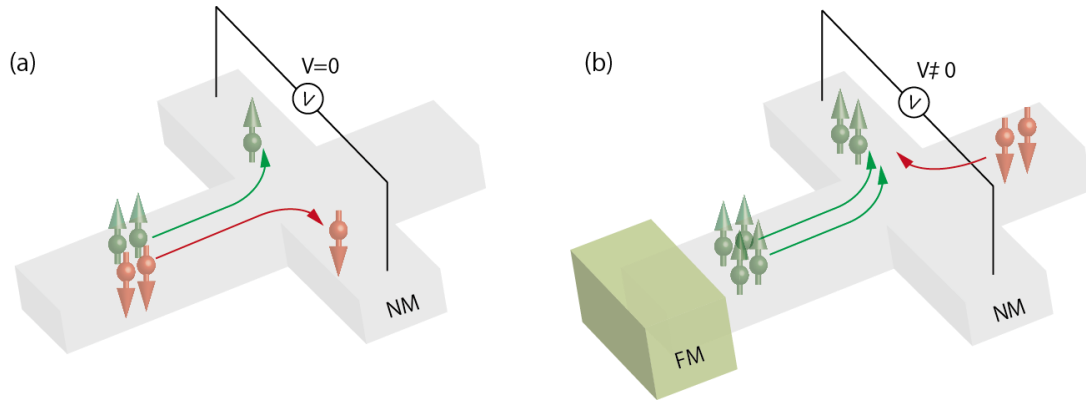


Fig. 2. 3 Illustrations of (a) SHE and (b) ISHE

- Skew scattering

SKは Mott scattering ともいわれ[46,47]、1958年に Smit によって提唱された[48]。このメカニズムは散乱面において有効磁場の勾配が働くことによって SOI が発生すると考えられており、スピンの向きによって散乱の中心から離れるか引き継がれるかが決められる(Fig. 2.4(a))。従って SK に基づいて生じる SHE は散乱中心から等方性を示すことから、反転対称性の破れが必要な Intrinsic SOI とは異なる。また SK によって得られる SHE は不純物の濃度に比例し、下式のような関係が成り立つ。

$$\rho_{SHE,SK} \propto \rho_{imp} \quad (2.13)$$

ここで  $\rho_{SHE,SK}$  は SK によって得られる SHE における横抵抗( $\rho_{xy}$ )、 $\rho_{imp}$  はチャネルの不純物の依存する縦抵抗( $\rho_{xx}$ )である[49, 50]。

- Side jump

1970年 Berger は金属中の異常ホール効果の説明において SK とは異なるメカニズムを提案し、散乱中にスピンに依存した'位置のずれ(displacement)' という概念を導入する[51]。すなわち、スピン向きによって電子は散乱中に加速(acceleration)あるいは減速(deceleration)を感じ、それが縦抵抗の有効的な位置ずれを発生すると主張した(Fig. 2.4(b))。この場合得られる SHE は

$$\rho_{SHE,SJ} \propto \rho_{imp}^2 \quad (2.14)$$

$$\rho_{SHE,SJ} \propto \rho_{imp} \rho_{total} \quad (2.15)$$

となる。不純物が抵抗の主な割合を示す場合は Eq. (2.14)が、それではない場合は Eq. (2.15)の関係が成り立つと知られている[49, 50]。

通常金属中観測されえる SHE において SJ の寄与は SK に比べ小さいと知られているが[52]、Eq. (2.14)のように不純物が支配的な系であると SJ による SHE が巨大になることが考えられ[53]、それに関連した報告もされている[54]。

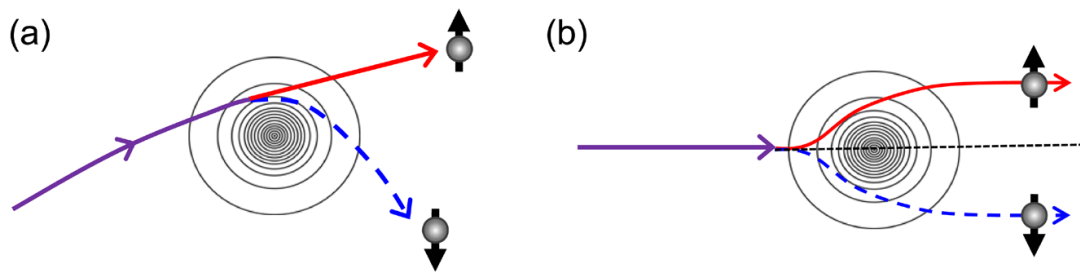


Fig. 2. 4 Illustrations of (a) skew scattering and (b) side jump near a potential center. Graphic taken from [47]. SK gives spin dependent net force from the center of scattering site, however SJ induces spin dependent displacement on the center of scattering site.

## 2.2 Spin relaxation

スピンには電荷とは異なる‘緩和’という特性があり、スピン流を用いるためには‘スピンの緩和’に関して理解しなければならない。電流は電磁気学で示されるように電荷保存則が成り立ち、常に保存量となる。一方、スピンは一般的に保存量ではなく、ある距離以上では元の情報を失ってしまう。この現象をスピン緩和 (spin relaxation) と呼び、スピンの情報が保存される距離をスピン緩和長 (spin relaxation length;  $L_{so}$ ) と定義する。(スピン注入によるスピン拡散現象の場合はスピン拡散長 (spin diffusion length) と呼ぶが、本論文ではその区別はしないことにし、以下スピン緩和長で表現する。)

ある電子が有するスピンが揃っている状態であっても、進行中 SOI を感じるとそれによって必然的にスピン緩和が生じる。ここでは前節で記述した SOI をもとにスピン緩和メカニズムについて述べる。

### 2.2.1 Elliott – Yafet mechanism

今まで我々はスピンの角運動量  $\pm\hbar/2$  という二つの状態を持つと考えてきたが、実際のスピンの向きは結晶内の波数ベクトルによって変わる。Fig. 2.3 のように、任意のバンドにおけるスピンの方向を考えてみると波数ベクトルが異なるとスピンの状態も変化する。勿論ある波数ベクトルではスピンは二つの状態に限られる。この系で非磁性体による(不純物、フォノン、結晶粒界など) 散乱を考える。散乱によって電子は元の波数ベクトルが変わり、従ってスピンの状態も変化することになる (Fig. 2.3 における  $k_1 \rightarrow k_2$ )。

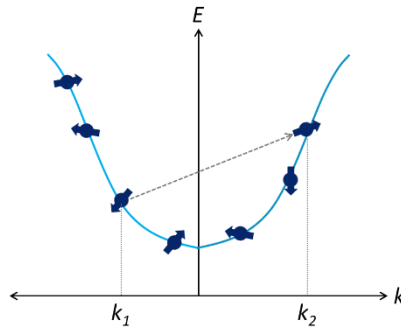
以上のような散乱によってスピンの緩和が生じる現象を Elliott – Yafet mechanism (EY) と呼ぶ。EY では散乱が起こるほどスピンの緩和が進行することが容易に想像できる。ただし散乱媒体が何かによってスピンが変化する度合は異なると言われている。例えばイオン不純物よりは音響フォノンによる散乱が大きなスピンの向きの変化をもたらす[55, 56]。

縮退を考慮しないバルク半導体における EY メカニズムによるスピンの緩和は以下のように記述できる[57]。

$$\frac{1}{\tau_{EY}} = A \left( \frac{k_B T}{E_g} \right) R^2 \left( \frac{1 - R/2}{1 - R/3} \right)^2 \frac{1}{\tau_p} \quad (2.16)$$

ここで  $T$  は温度、 $E_g$  はバンドギャップ、 $R = \Delta/(\Delta + E_g)$ 、 $\Delta$  は価電子帯におけるスピンスプリッティング (spin splitting)、 $\tau_p$  はモメンタム散乱時間 (momentum scattering time)、 $k_B$  はボルツマン定数である。A は定数である。ゆえに、EY メカニズムにおける緩和レート (relaxation rate)  $1/\tau_{EY}$  は



Fig. 2. 5 Illustration of state of spin on certain  $k$ 

$$\frac{1}{\tau_{EY}} \propto \frac{1}{\tau_p} \quad (2.17)$$

と表すことができる[58]。

Eq. (2.16)は $\tau_{EY}$ と $\tau_p$ の温度依存性が異なることを表している。 $\tau_m$ は弾性散乱である場合温度依存性を示さないのに対し、 $E_g$ と $\Delta$ の影響を無視すれば $\tau_{EY}T$ の2次関数となる。しかしElliotは金属や強く縮退している電子ガスの場合は $\tau_{EY}$ と $\tau_m$ は同じ温度依存性を表すことを導きだした[59, 60]。

$$\frac{\tau_{EY}}{\tau_p} \propto \frac{\Delta}{E_g} \quad (2.18)$$

Eq (2.18)によると、 $E_g$ と $\Delta$ の温度依存性を無視できれば $\tau_{EY}$ と $\tau_m$ は同じ温度依存性を示すことを表している。実際に金属において上式に従う実験結果も得られた[61]。

### 2.2.2 D'yakonov-Perel' mechanism

2.1でRashba SOIとDresselhaus SOIに関して述べたように、反転対称性が破れている系で電子は有効磁場を感じる。また有効磁場の向きは波数ベクトルに依存する(Fig. 2.3 (b) and (c))。従ってRashba SOI及びDresselhaus SOIによる有効磁場を $\vec{B}(\vec{v})$ と記述することができる。また有効磁場 $\vec{B}(\vec{v})$ はラーモアの歳差運動(Larmor precession)を起こす。この歳差運動の周波数は下式のように記述できる。

$$\vec{\Omega}(\vec{v}) = \frac{g\mu_B}{\hbar} \vec{B}(\vec{v}) = \frac{e}{m_0} \vec{B}(\vec{v}) \quad (2.19)$$

この計算において $g$ 因子は2とおいた。式(1.19)からラーモアの歳差運動は $\vec{B}(\vec{v})$ だけに依存することが分かる。

ここで同じ向きに偏極されたスピン流を考える。もしこの速度ベクトル $\vec{v}$ が一定であれば、 $\vec{B}(\vec{v})$ も一定になり、周波数 $\vec{\Omega}(\vec{v})$ は一定となる。従ってスピンの向きは時間によって変化するがすべてのスピンの向きが同じようにふるまうためスピンは緩和しないことが明らかとなる。しかし散乱によって $\vec{v}$ がランダムに変わると $\vec{\Omega}(\vec{v})$ は変化し、



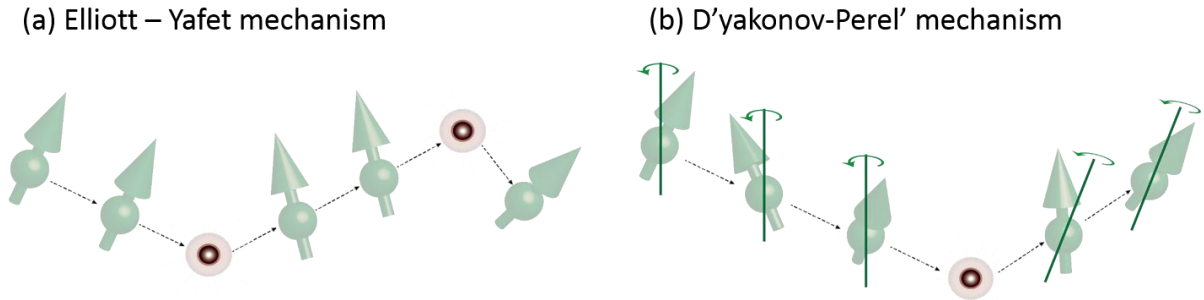


Fig. 2. 6 Illustration for (a) EY and (b) DP. In EY, the spin changes its state when it is scattered, the scattering. On the other hand, the spin experiences precession during the scattering events.

それぞれ異なる値を持つ。ゆえに同方向に揃っているスピンは散乱を受けるたびに運動方向が変化し周波数もともに変わってしまうため、位相がずれる結果を生み出す。十分長い時間が経つとスピンの情報は全て打ち消される。

以上の反転対称性が破れている系において運動するスピンが感じる緩和機構を D'yakonov-Perel' (DP) mechanism(以下 DP)と呼ぶ。

一般的に DP メカニズムにおける緩和レート  $1/\tau_{DP}$  は

$$\frac{1}{\tau_{DP}} \propto \tau_p \quad (2.20)$$

と表せる[2, 57, 62, 63]。EY とは反対の傾向であることが分かる。また  $\tau_m$  が温度の上昇によって短くなるため、DP における緩和レート  $1/\tau_{DP}$  は温度とともに増加する[63]。

上述した EY と DP のメカニズムとしての違いを簡単に表すと、Fig. 2. 4 のようになる。すなわち、EY では散乱を受けることでスピンの状態が変化する(Fig. 2. 4 (a))。それに対し、DP では進行している間に反転対称性が破れた系で存在する SOI の影響で歳差運動が起き、スピンの状態が変化する。また進行中散乱を受けることで進行方向が変わると、歳差運動の軸も変化する(Fig. 2. 4 (b))。

## 2.3 Spin-orbit torque

前章までの議論で、SOI は内因性や外因性の要因から生じ、有効磁場としてスピンの偏極を生じることを学んだ。ここでは SOI を有する HM と磁化を持っている FM からなら HM/FM のバイレイヤー構造を考える。SOI からなるスピンの偏極が HM/FM の界面に蓄積されると、FM の磁化に影響を与えることができ、このような現象を spin-orbit torque (SOT) と定義する。ここではスピンの蓄積及び SOT に関する物理を説明していく [64, 65]。なお、本論文で扱う FM は全て垂直磁気異方性(perpendicular magneto anisotropy:PMA)を有するため、本章では PMA を有する FM だけに集中する。

### 2.3.1 Spin accumulation

まず、HM 内の SOI で生成されたスピンの蓄積  $\mathbf{m}$  と FM にある磁化  $\mathbf{M}$  との相互作用を考える。任意の  $\mathbf{m}$  が FM に及ぼす挙動を数式で表すと

$$\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} + D \frac{\partial j_s}{\partial z} + \frac{eJ_{ex}}{\hbar} (\mathbf{m} \times \mathbf{M}) = -\frac{\mathbf{m}}{\tau_{sf}} \quad (2.21)$$

左辺はソース項であり、それぞれ時間に対するスピン蓄積の変化、HM から来るスピン流  $j_s$  の FM 内への拡散、 $\mathbf{m}$  と  $\mathbf{M}$  の相互作用を表す。ここで  $j_s$  が FM に拡散する項が SOT の役割を果たす。右辺はシンク項であり、FM 内のスピン緩和で逃げられるスピン蓄積を表し、FM のスピン緩和時間  $\tau_{sf}$  に反比例する。また  $D$  は拡散係数、 $\hbar$  はディラック定数(reduced Plank constant)、 $J_{ex}$  交換相互作用定数である。 $j_s$  は HM に存在する SOI によって生成され、SOI が生じる起源は 2.1 で述べたように様々な要因が考えられるが、主に原因として HM 内の SHE と HM/FM 界面で生じる Rashba SOI が挙げられている。簡単な導出のため、ここでは SHE の寄与だけを取り組む。その際の  $\mathbf{M}$  に対する  $j_s$  は、 $x$  方向に  $j$  を印加した場合  $z$  方向に上がってくる  $y$  方向のスピン流となる(Fig.2.7)。

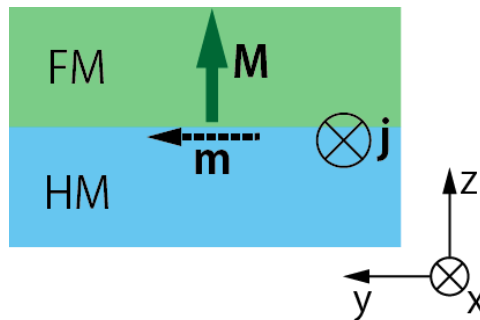


Fig. 2. 7 HM/FM bilayer system considered in the derivations. A charge current  $J$  along  $x$  drives a non-equilibrium spin accumulation ( $\mathbf{m}$ ) parallel to  $y$  due to SOI induced by SHE in HM or Rashba SOI at HM/FM interface.

$j$  と  $j_s$  は drift-diffusion approximation から導くことができ[66, 67]、 $j_s$  を  $Q_{ij}(A/m^2)$  として書くと

$$j = \sigma \nabla \mu - \sigma_{SH} (\nabla \times \mathbf{m}) \quad (2.22)$$

$$Q_{ij} = -\sigma \nabla_i m_j - \sigma_{SH} \varepsilon_{ijk} \nabla_k \mu \quad (2.23)$$

ここで  $j$  はベクトルであるが、 $Q_{ij}$  は  $j$  方向のスピンの  $i$  方向に流れるスピン流を表すテンソルである。Eq.2.22 にある  $j$  は電気化学ポテンシャルから得られるドリフトと拡散の項であり、 $\nabla \mu = E + \frac{\nabla n}{e N_F}$  であり、 $E$  は電場、 $n$  はキャリア密度、 $N_F$  はフェルミ面における状態密度である。電気伝導度  $\sigma$  はアインシュタインの関係より  $\sigma = e^2 N_F D$  として表される。右辺の第2項は HM からスピン蓄積が生じた場合の寄与であり、 $\sigma_{SH}$  は SHE から得られる電気伝導度である ( $\sigma_{SH} = \theta_{SHE} \sigma$ )。

Eq.2.23 は  $j_s$  を表しており、第1項は蓄積された  $j_s$  の拡散を、第2項目は SHE から得られる  $j_s$  となる<sup>1</sup>。Fig.2.7 で定義したように SHE からの  $j_s$  は  $\mathbf{j}/\mathbf{x}$ ,  $\mathbf{m}/\mathbf{y}$  として考えられる。従って Eq.2.23 は次式としてスピン流を表すことができる。

$$j_s = Q_{zy} = -\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial z} - \theta_{SHE} j \quad (2.24)$$

Eq.2.24 を Eq.2.21 に代入すると

$$\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} - D \frac{\partial^2 \mathbf{m}}{\partial z^2} - \frac{\partial j_{SH}}{\partial z} + \frac{e J_{ex}}{\hbar} (\mathbf{m} \times \mathbf{M}) = -\frac{\mathbf{m}}{\tau_{sf}} \quad (2.25)$$

となり、下式のように変形することができる。

$$\frac{1}{D} \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} - \frac{\partial^2 \mathbf{m}}{\partial z^2} + \frac{1}{D} \frac{\mathbf{m}}{\tau_{sf}} + \frac{1}{D} \frac{e J_{ex}}{\hbar} (\mathbf{m} \times \mathbf{M}) = \frac{1}{D} \frac{\partial j_{SH}}{\partial z} \quad (2.26)$$

$\lambda_{sf} = \sqrt{D \tau_{sf}}$  と  $\lambda_{Jex} = \sqrt{D \hbar / e J_{ex}}$  の関係を代入してあげると次式にたどり着く。

$$\frac{1}{D} \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} - \frac{\partial^2 \mathbf{m}}{\partial z^2} + \frac{\mathbf{m}}{\lambda_{sf}^2} + \frac{1}{\lambda_{Jex}^2} (\mathbf{m} \times \mathbf{M}) = \frac{1}{D} \frac{\partial j_{SH}}{\partial z} \quad (2.27)$$

ここではソース項が右辺となる。左辺はそれぞれスピン蓄積の時間的变化、空間的变化、交換相互作用による散逸となる。また  $\lambda_{sf}$  は FM のスピン緩和長、 $\lambda_{Jex}$  は交換相互作用が生じる距離 (~1nm) として定義される。

<sup>1</sup> ここで  $\varepsilon_{ijk}$  は Levi-Civita symbol である。

### 2.3.2 Spin torque effect

電流を注入した場合、一定のスピン蓄積を得るための時間スケールは FM レイヤー全体の磁化ダイナミクスに要される時間スケールより遥かに短いため、両方の過程は独立して考えることができる。ここでの説明では、まず定常状態における  $j_s$  を計算し、次にそれを磁化ダイナミクスに反映していくことにする。定常状態は  $\partial \mathbf{m} / \partial t = 0$  を意味している。さらに、ここでは FM における磁化の挙動を考えており、ソース項は FM からくるスピン流は存在しないと仮定するため Eq.2.27 における右辺は 0 となる。以上の仮定に基づき、 $\mathbf{m}$  を Eq.2.27 を縦の成分(longitudinal component:  $\mathbf{m}_{\parallel} = \mathbf{m} \cdot \mathbf{M}$ )と横の成分(transverse component:  $\mathbf{m}_{\perp} = \mathbf{m} \times \mathbf{M}$ )で分けて表すと<sup>2</sup>

$$\frac{\partial^2 \mathbf{m}_{\parallel}}{\partial z^2} - \frac{\mathbf{m}_{\parallel}}{\lambda_F^2} = 0 \quad (2.28)$$

$$\frac{\partial^2 \mathbf{m}_{\perp}}{\partial z^2} - \frac{\mathbf{m}_{\perp}}{\lambda_{sf}^2} - \frac{1}{\lambda_{jex}^2} (\mathbf{m}_{\perp} \times \mathbf{M}) = 0 \quad (2.29)$$

縦の成分に関するスピン蓄積の場合(Eq. 2.28)、スピン拡散長  $\lambda_F$  (spin diffusion length)<sup>3</sup>と関連しており、FM における  $\lambda_F$  は比較的長いスケールである(Co の場合 ~60nm)。それに対し、縦の成分の場合は  $\lambda_{sf}$  及び  $\lambda_{jex}$  によって支配される。一般的に  $\lambda_{sf} \gg \lambda_{jex}$  であるため、第 3 項の歳差運動が主なメカニズムとなる。

$\mathbf{M}$  に与えられる  $\mathbf{m}$  の影響を考えるためには Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)式から出発する必要がある、

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times (\mathbf{H} + \mathbf{J}_m) + \alpha \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \quad (2.30)$$

ここで  $\mathbf{J}_m$  は  $j_s$  からなる  $\mathbf{m}$  と FM 内の  $\mathbf{M}$  の間で生じる付加的な有効磁場である。また  $\mathbf{H}$  は外部磁場や異方性、反磁性などによる磁場となる。 $\gamma_0$  は gyromagnetic ratio、 $\alpha$  はダンピング定数である。上式から Eq.(2.29)の  $\mathbf{m}_{\perp}$  だけが磁化のダイナミクスに影響を及ぼしていることが明らかにわかる。 $\mathbf{m}_{\perp}$  を蓄積された面を基準として下記のように定義できる。

$$\mathbf{J}_{m_{\perp}} = a \mathbf{m} \times \mathbf{M} + b \mathbf{m} \quad (2.31)$$

ここで  $a, b$  は spin mixing conductance に依存するパラメータであり [68,69]、FM の膜厚にも依存する。Eq.(2.31)の右辺は磁化ダイナミクスにトルクとして作用すると考えることができ、スピン軌道トルク (spin-orbit torque:SOT)として定義される。また各項はそれぞれトルクの方角によって分けることができ、 $b \mathbf{m}$  だけに依存する 1)  $b \mathbf{M} \times \mathbf{m}$  と  $\mathbf{M}$  の方向によって変化する 2)  $a \mathbf{M} \times \mathbf{m} \times \mathbf{M}$  がある。1)の場合  $\mathbf{M}$  に関係せず  $\mathbf{M}$  を  $j_s$  の方向に倒そうとするため外部磁場のような振る舞いとして考えることができ、

<sup>2</sup> FM が無いと  $\lambda_{sf} = \lambda_{HM}$  となり、Eq.2.28 と Eq.2.29 は一致する。

<sup>3</sup> スピン緩和長  $\lambda_{sf}$  とは  $\lambda_F = \lambda_{sf} \sqrt{1 - \beta^2}$  の関係として表される。ここで  $\beta$  の FM のスピン偏極率である。

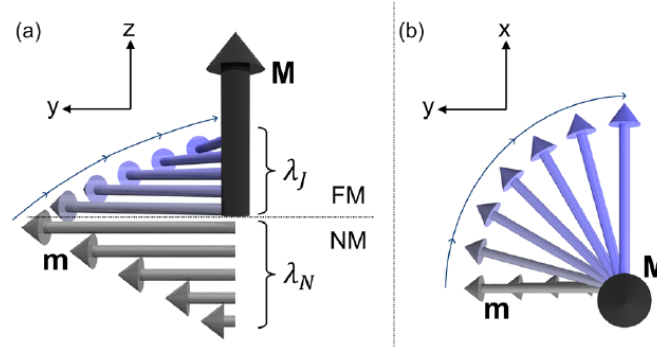


Fig. 2. 8 Illustration of the spin accumulation dynamics in the HM/FM bilayer driven by SHE. Gray arrows indicate the bare spin accumulation inside HM, purple arrows show the rotation of the spin accumulation around  $\mathbf{M}$  due to the exchange field, giving rise to a spin accumulation component that is along  $\mathbf{m} \times \mathbf{M}$ . Graphics taken from [70].

field-like torque( $B_{FL}$ )と呼ばれる<sup>4</sup>。次に、1)の場合は $\mathbf{M}$ の方向によって働く方向が随時変化し、ダンピングのような振る舞いを示すことから antidamping-like torque( $B_{AD}$ )と呼ばれる<sup>5</sup>。以上の SOT は $j_s$ から現れる $\mathbf{m}$ と $\mathbf{M}$ だけの相互作用で決まる物理現象であることから大変重要な意味を持つ。

他に SOT の発現を理解するには、スピン蓄積が角運動量として $\mathbf{M}$ に与える影響を考えれば良い。FM の角運動量は常に保存されることから、定常状態では $z$ 方向におけるスピン流の変化は $\mathbf{M}$ における体積当たりのトルク  $\mathbf{T}$  に比例する。

$$\frac{\mathbf{T}}{V} \propto \frac{\partial \mathbf{J}_m}{\partial z} \quad (2.32)$$

界面におけるスピンの蓄積が全て FM に吸収されると仮定すると、FM 全体の  $\mathbf{T}$  は膜厚  $t$  に対し

$$\Delta \mathbf{T} = \int_0^t (\partial \mathbf{J}_m / \partial z) dz = \mathbf{J}_m(t) - \mathbf{J}_m(0) \quad (2.33)$$

Eq(2.1), (2.4), (2.5)から $B_{AD}$ は

$$\frac{\partial \mathbf{J}_m}{\partial z} \propto \frac{\partial^2 \mathbf{m}}{\partial z^2} \propto \frac{\mathbf{m} \times \mathbf{M}}{\lambda_{Jex}^2} \quad (2.34)$$

Eq.(2.14)における最も重要な結果は、 $\mathbf{m} \parallel \mathbf{y}$ ,  $\mathbf{M} \parallel \mathbf{z}$ の条件で  $y$  方向に平行した $B_{AD}$ は FM の  $x$  方向のスピンの蓄積から得られ、 $x$  方向に沿った $B_{FL}$ は  $y$  方向のスピンの蓄積

<sup>4</sup> Rashba SOI からなる $j_s$ の方向と同じであるため、Rashba-like torque と定義されることもある。

<sup>5</sup> 主張した研究者名を称し、Slonczeski-like torque と呼ぶこともある( $B_{AD} = B_{SL}$ )。

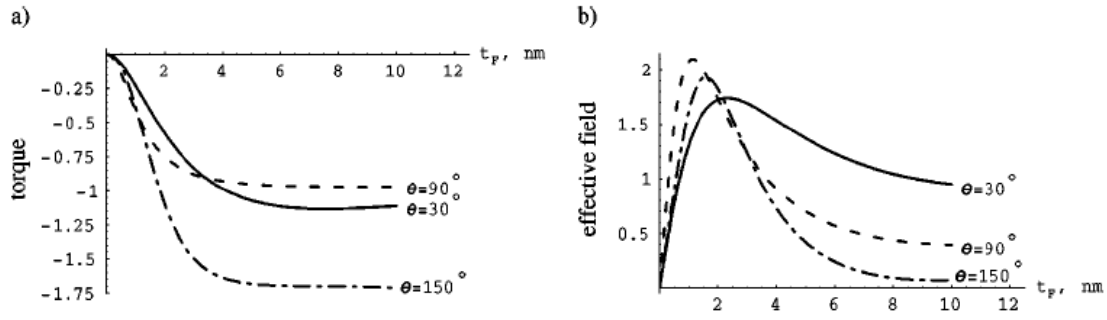


Fig. 2. 9 (a) Total torque and (b) total effective field acting on the thin ferromagnetic layer as a function of its thickness  $t_F$  for  $\lambda_{Jex}=4$  nm,  $\lambda_F=60$  nm, and zero interface resistance, values are representative of that of Co. The angles refer to relative orientation of the polarizer reference layer and the FM layer for which the calculations are performed. Results taken from [65]

から求められることである。以上のことは直観的には感じられないが、トルクはスピンの流の勾配から得られることから理解できる。つまり  $B_{FL}$  はスピン蓄積によって  $\mathbf{M}$  を素早く回転させることから界面に強く依存する効果として考えられる。それに対し  $B_{AD}$  はバルクの効果として考えられ、FM 内に空間的変化を生み出す。Fig.2.8 のように、SHE によって得られるスピン蓄積は  $\mathbf{M}$  との交換作用を通じてスピン蓄積の方向が  $\mathbf{m} \times \mathbf{M}$  に沿って変わっていくことがわかる。

Shapiro らは FM/FM のバイレイヤー構造において spin transfer torque として  $B_{AD}$  及び  $B_{FL}$  の FM 膜厚依存性を調べた[65]。固定層(fixed layer)は限りなく厚いと仮定し、自由層(free layer)の膜厚を変えながら FM-FM 間の角運動量の輸送を計算した結果を Fig. 2.9 に表しておく。Fig. 2.9 (a) のトルクは本章で扱う  $B_{AD}$  を意味しており、(b) は  $B_{FL}$  に近い意味を有する。 $B_{AD}$  の場合 FM の膜厚につれ増加し、ある膜厚( $\lambda_{Jex}$  付近)から一定値を示す。これは  $\mathbf{m}$  と  $\mathbf{M}$  間の相互作用により  $B_{AD}$  が決まることを表している。しかし  $T_{FL}$  では界面の近くで最大値を示した後、急激に減少して行く結果が得られた。 $\lambda_{Jex}$  より狭い領域で局在している  $\mathbf{M}$  に対して  $B_{FL}$  は最も大きな効果を生み出し、FM 膜厚が厚くなるほどその効果が薄まっていくことが容易にわかる。

以上のように、SOT は SOI によって生まれる  $j_s$  が  $\mathbf{M}$  と相互作用を行うことで導かれる物理現象である。作用する方向や性質によって  $B_{AD}$  や  $B_{FL}$  として分けることができ、全体の SOT を表すと下式のようになる。

$$B_{eff} = B_{FL}(\mathbf{y} \times \mathbf{M}) + B_{AD}(\mathbf{M} \times \mathbf{y} \times \mathbf{M}) \quad (2.35)$$

ここで  $\mathbf{m} \parallel \mathbf{y}, \mathbf{j} \parallel \mathbf{x}$  となる。SOT を用いると外部磁場を使用せずに磁化の状態を制御することが可能になると期待され、近年盛んに研究が行われてきた。本章では  $B_{AD}$  は主に SHE によって生成され、 $B_{FL}$  は Rashba SOI によって得られると記述した。しかし近年の報告から[66,67, 71-76]、SOT の起源について様々な議論が行われており SHE や Rashba SOI 両方とも  $B_{FL}$  や  $B_{AD}$  に影響を及ぼしていると主張されている。従って  $B_{FL}$  や

$B_{AD}$  の値から直接的にその起源を決められるためにはより体系的な研究及び理論のサポートが要される。



## 2.4 Conclusion

本章ではスピントロニクスの中核的な概念となる SOI について紹介し、SOI からなる現象であると共に本論文の重要な原理となるスピン緩和及び SOT について学んだ。

電子を中心として考えたときに電子が感じる有効磁場を表す SOI は、その起源によって内因性 SOI と外因性 SOI として分けられる。反転対称性から生じる内因性 SOI は結晶反転対称性の破れによる Rashba SOI と構造反転対称性の破れからなる Dresselhaus SOI がある。従来までは半導体ヘテロ構造において内因性 SOI を用いたスピン緩和を制御が多く報告されていたが、近年では金属系に存在する Rashba SOI が注目されている。一方、外因性 SOI は散乱現象から起因する SOI を称し、SHE の原理を利用することで評価することができる。金属系においては SHE を用いた外因性 SOI が広く研究されており、不純物の濃度と得られる SHE の大きさとの関係から SK と SJ による外因性 SOI が知られている。

SOI が存在する系では、SOI が作る有効磁場によりスピンの緩和現象が生じる。スピン緩和メカニズムは SOI の起源と関連づけて説明することができ、外因性 SOI に基づく EY と、内因性 SOI からなる DP が挙げられる。EY の場合は散乱によりスピンの緩和が生じるため、 $\tau_{EY}$  は  $\tau_p$  に比例した関係で記述される。それに対し、反転対称性が破れている系において運動するスピンの感じる歳差運動から起きる DP の場合は、 $\tau_p$  に反比例した関係として  $\tau_{DP}$  が表される。従ってスピン緩和時間  $\tau_{SO}$  と  $\tau_p$  との関係をみることでスピン緩和メカニズムを調べることができる。

最後に、HM/FM のバイレイヤー構造において生じる SOT について紹介した。SOI を有する HM からなるスピンの偏極が HM/FM の界面に蓄積されると、FM の磁化に影響を与えることができ、これを SOT と定義する。スピンの蓄積を磁化ダイナミクスに取り組むことから SOT は  $\mathbf{M}$  に作用する方向や性質によって  $B_{AD}$  や  $B_{FL}$  として分けることができる。 $\mathbf{m} \parallel \mathbf{y}$ ,  $\mathbf{M} \parallel \mathbf{z}$  の条件下で  $B_{AD}$  の場合は  $y$  方向に平行した形式で作用し、 $B_{FL}$  は  $x$  方向に沿った方向に働くことがわかった。それぞれは SHE と Rashba SOI から得られると知られているが、詳しい起源については更なる研究が必要とされる。



## Reference

- [1] 江藤幹雄, 半導体中のスピン軌道相互作用入門(その 1)
- [2] Introduction to spintronics, S. Bandyopadhyay, M. Cahay, CRC press (2008)
- [3] E. Saitoh, M. Ueda, and H. Miyajima., Appl. Phys. Lett. **88**, 182509 (2006).
- [4] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, and S. Maekawa, Phys. Rev. Lett. **98**, 156601 (2007).
- [5] L. Vila, T. Kimura, and Y. Otani, Phys. Rev. Lett. **99**, 226604 (2007).
- [6] O. Mosendz, J. E. Pearson, F. Y. Fradin, G. E. W. Bauer, S. D. Bader, and A. Hoffmann, Phys. Rev. Lett. **104**, 046601 (2010); O. Mosendz, V. Vlaminck, J. E. Pearson, F. Y. Fradin, G. E. W. Bauer, S. D. Bader, and A. Hoffmann, Phys. Rev. B **82**, 214403 (2010).
- [7] M. Morota, Y. Niimi, K. Ohnishi, D. H. Wei, T. Tanaka, H. Kontani, T. Kimura, and Y. Otani, Phys. Rev. B **83**, 174405.
- [8] T. Seki, Y. Hasegawa, S. Mitani, S. Takahashi, H. Imamura, S. Maekawa, J. Nitta, K. Takanashi, Nature Mater. **7**, 125 (2008).
- [9] G. Mihajlović, J. E. Pearson, M. A. Garcia, S. D. Bader, and A. Hoffmann, Phys. Rev. Lett. **103**, 166601 (2009).
- [10] H. Kontani, M. Naito, D. S. Hirashima, K. Yamada, and J. Inoue., J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 103702 (2007).
- [11] T. Tanaka, H. Kontani, M. Naito, T. Naito, D. S. Hirashima, K. Yamada, and J. Inoue, Phys. Rev. B **77**, 165117 (2008).
- [12] H. Kontani, T. Tanaka, D. S. Hirashima, K. Yamada, and J. Inoue, Phys. Rev. Lett. **102**, 016601 (2009).
- [13] E. I. Rashba, Sov. Phys. Solid State **2**, 1224 (1960).
- [14] J. Nitta, T. Akazaki, H. Takayanagi, and T. Enoki Phys. Rev. Lett. **78**, 1335 (1997).
- [15] M. Kohda, V. Lechner, Y. Kunihashi, T. Dollinger, P. Olbrich, C. Schönhuber, I. Caspers, V. V. Bel'kov, L. E. Golub, D. Weiss, K. Richter, J. Nitta, and S. D. Ganichev, Phys. Rev. B **86**, 081306(R) (2012).
- [16] X. Cartoixa, D. Z.-Y. Ting and Y.-C. Chang, Appl. Phys. Lett. **83**, 1462 (2003).
- [17] J. Schliemann, J. C. Egues, and D. Loss, Phys. Rev. Lett. **90**, 146801 (2003).
- [18] Y. Kunihashi, M. Kohda, H. Sanada, H. Gotoh, T. Sogawa, and J. Nitta, Appl. Phys. Lett. **100**, 113502 (2012).
- [19] J. B. Miller, D. M. Zumbühl, C. M. Marcus, Y. B. Lyanda-Geller, D. Goldhaber-Gordon, K. Campman, and A. C. Gossard. Phys. Rev. Lett. **90**, 076807 (2003).
- [20] A. Sasaki, S. Nonaka, Y. Kunihashi, M. Kohda, T. Bauernfeind, T. Dollinger, K. Richter and J. Nitta, Nat. Nano. **9**, 703 (2014).
- [21] L. Meier, G. Salis, I. Shorubalko, E. Gini, S. Schön and K. Ensslin, Nature Phys. **3**, 650 (2007).
- [22] M. Studer, G. Salis, K. Ensslin, D. C. Driscoll, and A. C. Gossard, Phys. Rev. Lett. **103**, 027201 (2009).
- [23] I. M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, P. Gambardella, Nature **476**, 189 (2011).

- [23] G. Dresselhaus, Phys. Rev. **100**, 580 (1955).
- [24] W.-T. Wang, C. L. Wu, S. F. Tsay, M. H. Gau, I. Lo, H. F. Kao, D. J. Jang, and J.-C. Chiang, Appl. Phys. Lett., **91**, 082110 (2007)
- [25] S. D. Ganichev, V. V. Bel'kov, L. E. Golub, E. L. Ivchenko, Petra Schneider, S. Giglberger, J. Eroms, J. De Boeck, G. Borghs, W. Wegscheider, D. Weiss, and W. Prettl, Phys. Rev. Lett. **92**, 256601 (2004).
- [26] D. Bercioux, 'Spin-dependent transport in nanostructures', Ph. D thesis, Università degli studi di Napoli Federico II (2004).
- [27] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, Science, **306**, 1910 (2004).
- [28] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth, Phys. Rev. Lett. **94**, 047204 (2005).
- [29] S. O. Valenzuela and M. Tinkham, Nature, **442**, 7099, 176, (2006).
- [30] O. Mosendz, V. V. Vlaminc, J. E. Pearson, F. Y. Fradin, G. E. W. Bauer, S. D. Bader, and A. Hoffmann, Phys. Rev. B, **82**, 214403 (2010).
- [31] M. Morota, Y. Niimi, K. Ohnishi, D. H. Wei, T. Tanaka, H. Kontani, T. Kimura, and Y. Otani, Phys. Rev. B, **83**, 174405 (2011).
- [32] L. Liu, C.-F. Pai, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Science, **336**, 555 (2012).
- [18] C.-F. Pai, L. Liu, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Appl. Phys. Lett., **101**, 122404 (2012).
- [33] Y. Niimi, Y. Kawanishi, D. H. Wei, C. Deranlot, H. X. Wang, M. Chshiev, T. Valet, A. Fert, and Y. Otani, Phys. Rev. Lett., **109**, 156602 (2012).
- [34] Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nature, **464**, 262 (2010).
- [35] G. Mihajlović, J. E. Pearson, M. A. Garcia, S. D. Bader, and A. Hoffmann Phys. Rev. Lett., **103**, 166601 (2009).
- [36] H. Y. Hung, G. Y. Luo, Y. C. Chiu, P. Chang, W. C. Lee, J. G. Lin, S. F. Lee, M. Hong, and J. Kwo, J. Appl. Phys., **113**, 17C507 (2013).
- [37] V. Vlaminc, J. E. Pearson, S. D. Bader, and A. Hoffmann, Phys. Rev. B., **88**, 064414 (2013).
- [38] T. Seki, Y. Hasegawa, S. Mitani, S. Takahashi, H. Imamura, S. Maekawa, J. Nitta, and K. Takanashi, Nature Mater., **7**, 125 (2008).
- [39] J. Fan and J. Eom, Appl. Phys. Lett., **92**, 142101 (2008).
- [40] Y. Niimi, M. Morota, D. H. Wei, C. Deranlot, M. Basletic, A. Hamzic, A. Fert, and Y. Otani, Phys. Rev. Lett., **106**, 126601 (2011).
- [41] K. Ando and E. Saitoh, J. Appl. Phys., **108**, 113925 (2010).
- [42] K. Kondou, H. Sukegawa, S. Mitani, K. Tsukagoshi, and S. Kasai, Appl. Phys. Exp., **5**, 073002 (2012).
- [43] K. Ando, S. Takahashi, K. Harii, K. Sasage, J. Ieda, S. Maekawa, and E. Saitoh, Phys. Rev. Lett., **101**, 036601 (2008).
- [44] K. Ando, S. Takahashi, J. Ieda, Y. Kajiwara, H. Nakayama, T. Yoshino, K. Harii, Y. Fujikawa, M. Matsuo, S. Maekawa, and E. Saitoh, J. Appl. Phys., **109**, 103913 (2011).
- [45] L. Liu, T. Moriyama, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Phys. Rev. Lett., **106**, 036601 (2011).

- [46] L. D. Landau E. M. Lifschitz Quantum Mechanics New York:Pergamon (1965).
- [47] M. Gradhand D. V. Fedorov P. Zahn I. Mertig, **104**, 186403 (2010).
- [48] J. Smit, Physica **24**, 39 (1958).
- [49] Y. Niimi and Y. Otani, Rep. Prog. Phys. 78 124501 (2015).
- [50] A. Hoffmann, IEEE Trans. Magn., **49**, 5172 (2013).
- [51] L. Berger, Phys. Rev. B, **2**, 4559 (1970).
- [52] S. Lowitzer, M. Gradhand, D. Ködderitsch, D. V. Fedorov, I. Mertig and H. Ebert, Phys. Rev. Lett., **106**, 056601 (2011).
- [53] A.Fert and P.M. Levy, Phys. Rev. Lett., **106**, 157208, (2011).
- [54] R. Asomoza, A. Fert, and R. Reich, J. Less-Common Met., **90**, 177 (1983).
- [55] Introduction to spintronics, S. Bandyopadhyay, M. Cahay, CRC press (2008).
- [56] R. J. Elliott, Phys. Rev. **96**, 266 (1954).
- [57] G. E. Pikus and A. N. Titkov in *Optical Orientation*, Eds. F. Meier and B. P. Zakharchenya (North Holland, Amsterdam, 1984).
- [58] P. Bross, B. Dóra, A. Kiss and F. Simon, Scientific reports, **3**, 3233 (2013)
- [59] F. J. Jedema, M. S. Nijboer, A. T. Filip,, and B. J. van Wees Phys. Rev. B, **67**, 085319 (2003).
- [60] Y. Yafet in *Solid State Physics*, Eds. F. Seitz and D. Turnbull, **14** (Academic, New York, 1963).
- [61] F. Monod and P. Beunue, Phys. Rev. B, **19**, 911 (1979).
- [62] Concepts in spin electronics, S. Maekawa, Oxford University Press (2006).
- [63] J. Kainz, U. Rössler and R. Winkler, Phys. Rev. B, **70**, 195322 (2004).
- [64] S Zhang, P. M. Levy, and A Fert. Phys. Rev. Lett., **88**, 236601 (2002).
- [65] Asya Shpiro, Peter M. Levy, and Shufeng Zhang Phys. Rev. B, **67**, 104430 (2003).
- [66] Paul. M. Haney, Hyun-Woo Lee, Kyung-Jin Lee, Aurélien Manchon, and M. D. Stiles. Phys. Rev. B, **87**, 174411 (2013).
- [67] R V. Shchelushkin and Arne Brataas. Phys. Rev. B, **71**, 045123 (2005).
- [68] O. Mosendz, J.E. Pearson, F.Y. Fradin, G.E.W. Bauer, S.D. Bader, and A. Hoffmann, Phys. Rev. Lett., **104**, 046601 (2010).
- [69] K. Xia, P.J. Kelly, G.E.W. Bauer, A. Brataas, and I. Turek, Phys. Rev. B, **65**, 220401 (2002).
- [70] Can Ounr Avci, Ph.D thesis, ETH ZURICH (2015).
- [71] Aurelien Manchon, *arXiv*:**1204**,4869, (2012).
- [72] XuhuiWang and AurelienManchon, *arXiv*:**1111**. 5466, (2011).
- [73] XuhuiWang and AurelienManchon, Phys. Rev. Lett., **108**, 117201, (2012).
- [74] Kyoung-Whan Kim, Soo-Man Seo, Jisu Ryu, Kyung-Jin Lee, and Hyun-Woo Lee, Phys. Rev. B, **85**,180404, (2012).
- [75] M. Hayashi, J. Kim, M. Yamanouchi, and H. Ohno., Phys. Rev. B, **89**, 144425d (2014).
- [76] K. Garello, I. M. Miron, C. O. Avci, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel, S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin and P. Gambardella., Nat. Nano., **8**, 587 (2013).

## 3. Methods for Device fabrication and Evaluation of Crystallographic information

本章では本研究に用いられた試料の作製及び結晶性の評価に使用した方法について紹介する。3.1 では試料の成膜や微細加工に用いた装置の原理について述べる。次に、3.2 では結晶性の評価に行った方法に対して記述する。

### 3.1 Device fabrication

#### 3.1.1 Sputtering

加速されたイオンは、個体に衝突するとき、表面近傍で電界放射された電子により中和され中性となるが、運動量をそのまま保って個体に突入する。個体内部(表面近傍)では構成する原子や分子と衝突しながら徐々にエネルギーを失い停止する。個体はこの異粒子の突入により結晶が損傷を受けるとともに、結晶格子を構成する原子が相互に衝突を繰り返し、ついには表面の原子や分子が外部に放出される。このように原子サイズの粒子が個体表面から、個体を形成する粒子をたたき出すことをスパッタという。

スパッタ方式には様々な方法があり、本研究では高周波マグネトロンスパッタ(Radio frequency magnetron sputtering)を用いた。マグネトロンスパッタ方式(magnetron sputtering)はターゲット表面近くに、連続した磁場トンネル  $B$  とこれに直交する電場  $E$  により、ターゲット前面に高密度プラズマを作る。電子はこの閉領域をぐるぐる運動する。こうすることによりターゲットの電力密度とスパッタ速度を飛躍的に増大することができる。次に高周波スパッタ(Radio frequency sputtering)は絶縁物をスパッタしようとして考案された。直流電源を用いると、絶縁物の表面は流入するイオンが持ってくる正の電荷で覆われ、絶縁物の電位はプラズマの電位とほぼ等しくなり、放電が停止しスパッタも停止する。しかし電源を高周波にすると、絶縁物の両面間のキャパシタンスを通して高周波電流が流れ絶縁物のスパッタを行うことができる。金属をスパッタするとでも、このキャパシタンスに代わる、 $C$  となるコンデンサを回路に入れておけば同様にスパッタを行うことができる。以上のことから、高周波マグネトロンスパッタを用いると絶縁体から金属まであらゆる物質を成膜することができる [1]。

本研究では高周波マグネトロンスパッタ使用し成膜を行い、金属材料として Pt と Co を、絶縁体として  $\text{AlO}_x$  の成膜を行った。

### 3.1.2 Photolithography

試料上にレジストを均一に塗布した後、フォトマスク(または単にマスク)と呼ばれる、目的幾何学模様が Cr などの金属薄膜で刻まれたガラスプレートを密着させ、その上から波長 300nm 程度の紫外線を照射してレジストを感光させる方法である。マスクを試料に完全に密着させる密着法では解像度  $\approx 1 \mu\text{m}$  を得られるが、基板表面のわずかな傷も許されない場合はマスクと試料を 10-50  $\mu\text{m}$  はなして行われる近接法が用いられ、解像度は 2~5  $\mu\text{m}$  になる。このとき用いられるレジストにはポジティブレジスト (Positive resist) とネガティブレジスト (Negative resist) の二種類が存在する。ポジティブレジストは感光部分に変質して、現像液に溶け出すようになるのに対し、ネガティブレジストではポリマーの架橋反応によって分子量が増し現像液には溶けにくくなる。

本研究ではフォトマスクとして電子線リソグラフィで加工した Cr マスクを、レジストとしてはポジティブレジストを使用した。

### 3.1.3 Ar milling

現象する段階まで終わると、次はエッチングに移る。露光だけではレジスト部しか変化しないので、エッチングを行うことで想定しているサンプル構造を作成することができる。エッチング法は大きくウェットエッチング (Wet etching) とドライエッチング (Dry etching) が挙げられる。

ウェットエッチング法は、酸、アルカリなどの化学溶液を用いるエッチング法であり、化学反応のみを利用する。等方性形状のほかに結晶の面方位を巧みに利用して異方性形状を形成することができるため、半導体の微細加工に広く用いられている。

それに対し、ドライエッチング法はプラズマ中の反応種(イオン、高速中性粒子、ラジカル(中性活性種)、ガス)を用いる方法である。エッチング装置や反応種の選択により、反応機構(化学反応、物理反応、化学/物理反応)を制御することができる特徴がある [2]。

本研究におけるエッチング法はスパッタリングによるドライエッチング法である Ar ミリング法 (Ar milling) を使用した。この原理としては、3.1.1 で説明したスパッタリング現象とほぼ同じである。ただしこの場合には成膜することではなく削ることが目的であり、Ar イオンはサンプルをターゲットとして弾き出す。サンプルの表面にあるレジストは Ar イオンで削れないためレジストが覆われていない部分だけが除される。その後有機溶剤などを用いてレジストを溶かしてあげる(リフトオフ : Lift off) と、微細加工は完了となる。

以上のフォトリソグラフィ及びエッチングまでの過程を Fig. 3.1 に表す。

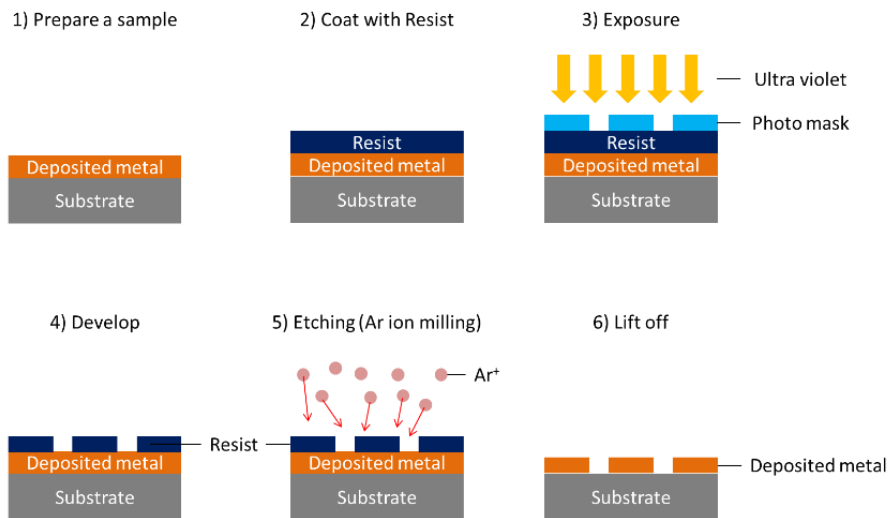


Fig.3. 1 Photolithography and dry etching (Ar milling)

### 3.1.4 Electron beam deposition

被蒸発材料に電子ビームを照射して加熱・蒸発させる真空蒸着法を電子ビーム蒸着という。Fig 3.2 に一般的な電子ビーム蒸着装置の原理図を示した。通常、電子銃は蒸発金属を避けるためそれよりも下方に位置し、電子ビームを磁界によって湾曲させ、ターゲットに誘導する。電子ビーム蒸着では加熱温度の上限が高いため高融点材料を蒸着する場合に適している。また、抵抗加熱蒸着と比較すると電子ビームはより精密なコントロールが可能であるため堆積膜圧の制御性がよい。

本研究では電極パットに電子ビーム蒸着を用いた。蒸着した材料は  $\text{AuGeNi}$ ,  $\text{Ti}$  と  $\text{Au}$  である。基板と  $\text{Au}$  の間に  $\text{AuGeNi}$  や  $\text{Ti}$  を成膜することによって接合性が向上され、 $\text{Au}$  電極パットの安定性を高めることができる。

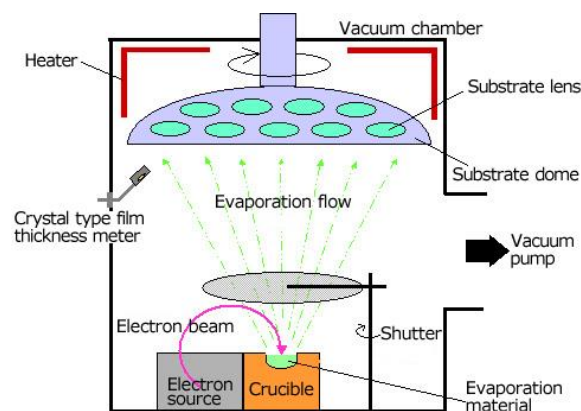


Fig.3. 2 Brief illustration of electron beam deposition



## 3.2 Crystallographic evaluation

### 3.2.1 Epitaxial growth

前節で説明したスパッタリング法で成膜を行うと、多くの場合結晶成長する。このうちすべての原子あるいは分子が規則正しい配列をしているとき単結晶膜と言い、多数の微細な結晶が集まってできた膜を多結晶膜、ほとんど結晶化されてない薄膜をアモルファス膜という。

金属を薄膜成長すると金属原子同士の凝集力で島状成長を始める。島状構造の方位は島状それぞれ同じではなく、また合体するときに変化する。そのためだいたいの場合金属は多結晶成長となる。アモルファス成長に関しては、成膜条件によって異なるが急冷が必要となるので金属では簡単に得ることは難しい。

単結晶膜を得るには、一般には単結晶基板上に薄膜を作成し、基板の結晶性の影響下で単結晶薄膜を成長させる。多結晶基板やガラスのような無定形固体基板の上に単結晶成長を行うことは極めて困難である。

基板結晶上に他の結晶が成長する場合、その結晶が基板の結晶に対してある定まった方位に成長する現象をエピタキシャル成長(epitaxial growth)と呼ぶ [3]。ある金属においてエピタキシャル成長を行う条件は明確に決まってはいるが、ここでは一般的に起こし易い条件について述べる。

- 基板と成膜する金属間のミスフィット(misfit)

基板の原子面間隔を  $a$ 、成長する金属の原子面間隔を  $b$  としたときに、

$$m = \left| \frac{b-a}{a} \right| \times 100 \quad (3.1)$$

をミスフィット  $m$  といい、 $m \leq 15\%$  以内である時がエピタキシャル成長しやすい。

- 成長温度

エピタキシャル成長をするためには基板の温度をある温度  $T_e$  以上に加熱する必要がある。この温度  $T$  は他の条件が変わるともちろん異なる。基板温度を加熱する理由は一般的に基板と成長される金属間のミスフィットを小さくするためである。特に基板が絶縁体あるいは半導体であり、成長するものが金属である場合だと熱膨張率は金属の方が高いため、温度を制御することでエピタキシャル成長することが可能となる。例えば絶縁体基板の原子面間隔を  $a$ 、成長する金属の原子面間隔を  $b$  であり、 $a > b$  である場合は高温にする方がミスフィットを縮めることができる。

- その他の条件

その他の条件として、残留ガスの影響、スパッタチャンバーの真空度、成膜速度、スパッタプレッシャー、アニーリングなどが挙げられる。この条件に関してははっきり決めることはできない。例えばTaのエピタキシャル成長では $\alpha$ -Taと $\beta$ -Taの成長によってスパッタプレッシャーが異なる [4]。

### 3.2.2 Reflection high - energy electron diffraction

RHEED (Reflection high - energy electron diffraction; 反射高速電子線回折) とは物質の表面の結晶構造を調べる効果的技術の一つである。RHEED の原理はエwald(Ewald sphere) を用いると理解しやすい。

- エwald球(Ewald sphere)

原子に存在する原子と原点から  $r$  だけ離れた位置に存在する原子が、互いに平行な  $(hkl)$  面上に存在し、しかも入射波と散乱波が  $(hkl)$  面に対して鏡面の関係になるような場合を考える。この場合の入射波(波数ベクトル  $k$ )と散乱波(波数ベクトル  $k'$ )及び  $(hkl)$  面の関係を図で表すと Fig.3.3 となる。

すなわち、 $K(=k'-k)$  は  $(hkl)$  面の逆格子ベクトル  $g_{hkl}^*(=ha^*+kb^*+lc^*)$  に平行になる。従って、

$$K = \eta g_{hkl}^* \quad (3.2)$$

となる。ここで  $\eta$  は定数である。

入射波  $\psi_{so}$  と反射波  $\psi_{sr}$  の干渉を考えてみると

$$\psi_{so} + \psi_{sr} = 1 + \exp(-2\pi i K \cdot r) = 1 + \exp\{-2\pi i \eta(hx + ky + lz)\} \quad (3.3)$$

となる。Eq. (3.3) が最大になるための十分条件は

$$\eta(hx + ky + lz) = \text{constant} \quad (3.4)$$

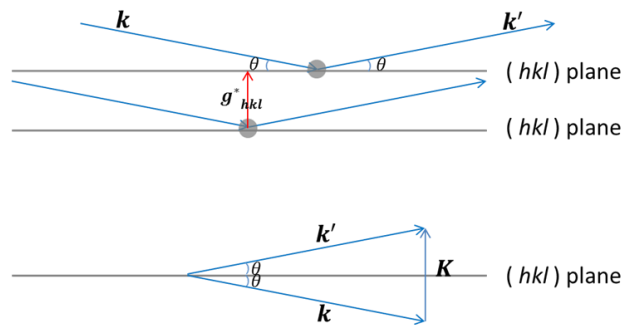


Fig.3. 3 Relationship between injected wave  $k$  and reflected wave  $k'$  on  $(hkl)$  plane



である。 $\eta=1$  とおくと、

$$\mathbf{K} = \mathbf{g}_{hkl}^* = h\mathbf{a}^* + k\mathbf{b}^* + l\mathbf{c}^* \quad (3.5)$$

となるので、この条件に沿って、逆格子の原点から  $k=|\mathbf{k}|=1/\lambda$  の点を中心として球を描くとエwald球が完成され、エwald球上に乗っている逆格子点が Eq. (3.3)において振幅が最大になる点である [5]。

次に、RHEEDの説明に移る。RHEEDでは10～50 keVの高エネルギーの電子線を $\theta \approx 0^\circ$ という極底角で入射する。エネルギーが高いと電子線の波数 $k$ は高くなり、エwald球上の格子点が増えるためRHEEDのパターンを観測しやすくなる。また極底角で入射することで全反射が起こりやすくなるのでRHEEDのパターンがより明確になる。

入射された電子線は前の説明のようにエwald球上で重ねあうため、結晶性による回折パターンが得られる(Fig 3.4, 3.5)。単結晶の場合は結晶表面の格子面方位が揃っているためスポットが半円状に並んでいるパターンが観測される。規則格子内で逆位相境界が存在するときはストリークパターンが得られる。しかし、表面が多結晶状態の場合は非常に暗いリング状が見られ、アモルファス状態の場合はぼやけたリング状が得られる。

RHEEDの短所としては、高真空中で行わないと非弾性散乱が起こり、測定が難しいという点と、結晶性の定量的評価が困難である点が挙げられる。

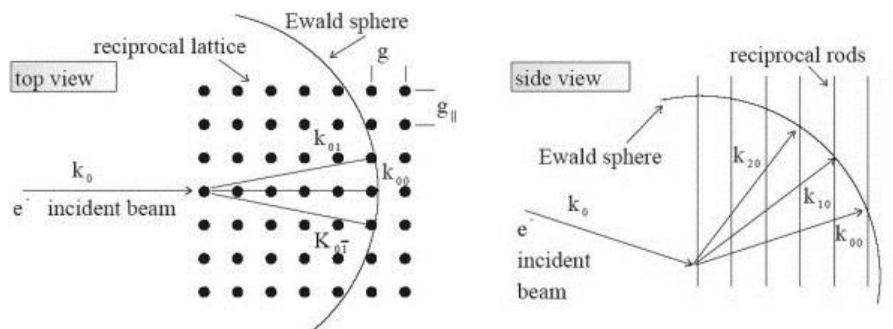


Fig.3. 4 Brief description for RHEED (2-dimensional plot) [6]

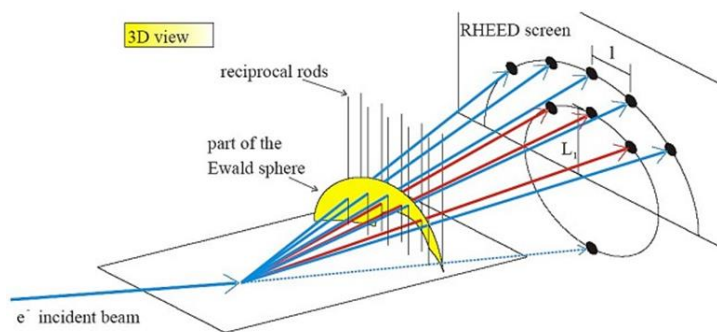


Fig.3. 5 Brief description for RHEED (3-dimensional plot) [6]

### 3.2.3 X-Ray Diffraction

X線回折(XRD; X-ray diffraction)は結晶の構造を決める有力な方法である。X線回折にはCu, Co, MoなどのK系列のX線が良く用いられる。 $K\alpha_1, K\alpha_2$ の2本の線は、波長が非常に近接しているため普通1本とみなし、これを単に $K\alpha$ と呼ぶ。 $K\alpha_1$ と $K\alpha_2$ の強度比は2:1であるから、 $K\alpha$ の波長はこれらの加重平均で与えられる。

$$\lambda_{K\alpha} = \frac{1}{3}(2\lambda_{K\alpha_1} + \lambda_{K\alpha_2}) \quad (3.6)$$

本研究におけるXRDの測定ではCu  $K\alpha$ を用いており、その波長は $\lambda_{K\alpha} = 1.543 \text{ \AA}$  ( $\lambda_{K\alpha_1} = 1.544 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_{K\alpha_2} = 1.541 \text{ \AA}$ )となる[7]。

このX線を結晶にあてると、結晶中の各原子から回折現象が起こる。原子が結晶中に規則正しい配列をしていれば、角度 $\theta$ で入射した波長 $\lambda$ の波は、各原子から反射され結晶から出てくる。隣り合う面からの光路差が波長 $\lambda$ の整数倍の時、反射波が強めあう。この条件は面間隔を $d$ とおくと

$$2d\sin\theta = n\lambda \quad (3.7)$$

の関係であることがすぐ導かれる。これをブラッグの条件と呼び、この時の反射をブラッグ反射という。X線を特定しておくとき $\lambda$ は一定であるので $\theta$ を変えながら測定をすると、この条件を満たす反射波が観測され、 $d$ を求められる(Fig. 3.6)。

またこの時のX線強度は様々な因子に影響され、その因子としてローレンツ因子(Lorentz factor)、吸収因子(Absorption factor)、面の多重度(Multiplicity factor)、結晶構造因子(Structure factor)などが挙げられる。単結晶の場合回折X線の強度は動力学理論(Dynamical theory)によると結晶構造因子ないしその2乗に比例するという。その式は結晶の完全性、寸法、結晶の表面と回折格子面の角度などによって異なる[8]。本研究ではX線強度に関してはあまり触れないので、以上の簡単な説明で済ませる。より詳細に関しては専門書などを参照されたい。

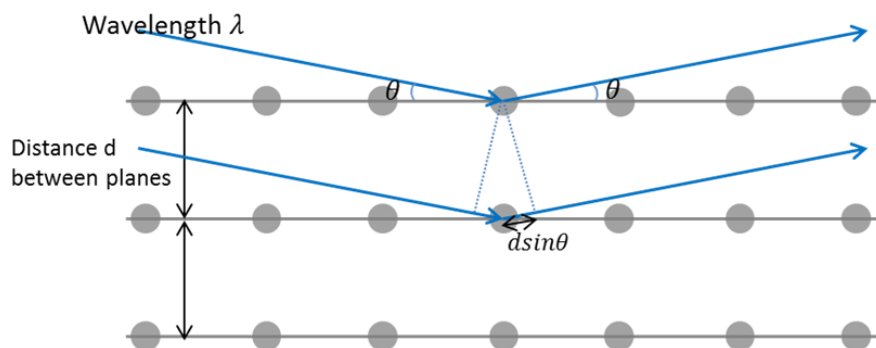


Fig.3. 6 Description of Bragg's law

### 3.2.4 In plane X – ray diffraction

In plane X-RD (In plane X – ray diffraction; 面内 X 線回折)の原理は X 線回折と同じである。相違点は X 線をどの方向で照射するかである。X - RD では面直方向に入射することで面直方向の面間隔が分かる。ただし X – RD の結果だけでは面内の結晶性が調べられないため、試料が単結晶に成長されていたとしても基板とのマッチング及び面内における結晶の乱れは評価できない。それに対して、In plane X - RD では面内方向に向けて X 線を入射するため面内方向の面間隔を測定できる。また試料を回転しながら測定を行うと、面内方向に対する対称性も得られる。従って、この測定法は薄膜のエピタキシャル成長の評価に大変有効な方法といえる。

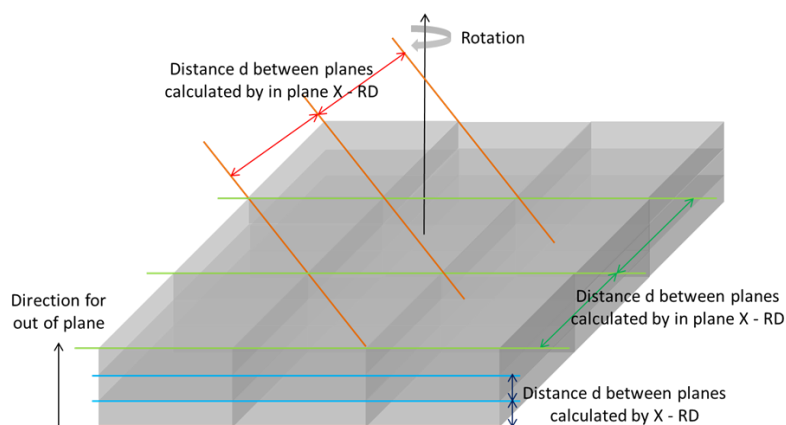


Fig.3. 7 Different characteristic between XRD and In plane XRD

### 3.2.5 Transmission electron microscopy

透過電子顕微鏡(TEM; Transmission electron microscopy)とは薄膜試料に電子線を照射し、試料の内部構造を観測する手法である。TEM から得られる画像により、試料の結晶性及び膜厚、粒界など様々な内部情報を調べられる。前述した測定手法とは違い、nm オーダーの構造を直接的に観察できるため結晶評価法としては最も信頼性が高い手法であるといえる。

単結晶試料に平行な電子線が入射したとする。電子線は結晶内を直進して結晶を透過する電子線(透過波)と、結晶内でブラッグ回折をお越し入射電子線に対し $2\theta$  ( $\theta$ : ブラッグ角)の角度で回折される回折電子(回折波)に分かれる。透過波、回折波のいずれも対物レンズの後焦点面に焦点を結んだあと、像面に試料の像を結ぶ。ここで、後焦点面上にフィルムを置けば電子回折図形(SAED; Selected Area electron diffraction)が得られる。像面にフィルムを置けば試料の拡大像、すなわち電子顕微鏡像が得られる。実際には、対物レンズを下方に置かれている中間レンズの焦点距離(中間レンズの電磁石の励起電流)を調整して、中間レンズ、投影レンズの下方に置かれたフィルム上に電子回折図形または電子顕微鏡像を結像させる。

RHEED の節で説明したように、エワルド球が逆格子点  $g_{hkl}^*$  を切ると  $(hkl)$  面はブラッグ回折を起こす。試料とフィルムの間にレンズがない場合、ブラッグ回折を起こした回折波はフィルム上に投影される。これを回折スポット(diffraction spot)という。 $(hkl)$  面(面間隔  $d_{hkl}$ )からの回折スポットと透過波のスポット(direct spot)の距離  $r_{hkl}$  は、フィルム上で

$$r_{hkl} d_{hkl} = \lambda L \quad (3.8)$$

の関係がある。ここで  $\lambda$  は電子線の波長、 $L$  は試料とフィルム間の距離でカメラ長(camera length)と呼ばれる。右辺の  $\lambda L$  は試料の物理的性質とは関係ない装置定数で、カメラ定数(camera constant)と呼ばれる。従って、Eq.(3.8)から面間隔及び逆格子が求められ(Fig. 3. 9)、電子回折図形から結晶性を評価することができる。例えば、ランダムな方位を有する多結晶に対して逆格子は一連の同心円となる。一方、単結晶からの電子回折図形は逆格子を電子線の入射方向に垂直な平面に切ったものになる[5]。

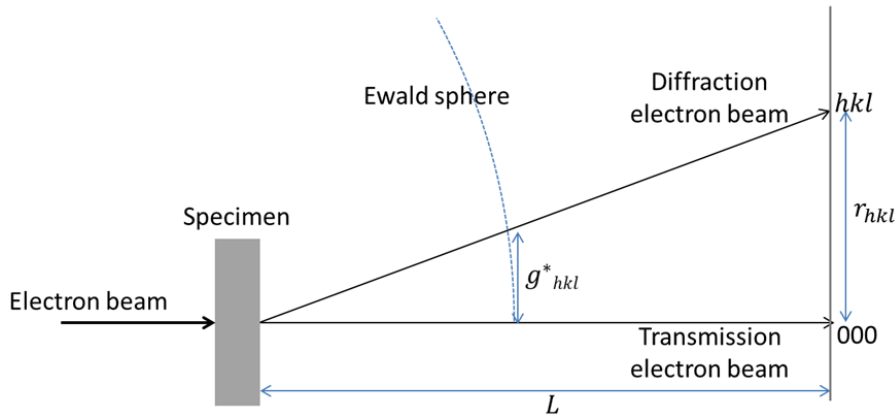


Fig.3. 8 Diffraction spot of the reciprocal lattice and Ewald sphere

## Reference

- [1] 薄膜作成の基礎、麻蒔立男、日刊工業新聞社 (2005).
- [2] エッチング技術の基礎、下川房男、精密工学会、77, 2 (2011).
- [3] 超微細加工の基礎、麻蒔立男、日刊工業新聞社 (2001).
- [4] A. A. Navid and A. M. Hodge, Mater. Sci. and Eng. A, **536**, 49 (2012).
- [5] 結晶電子顕微鏡学、坂公恭、内田老鶴圃 (1997).
- [6] Jürgen Klein, PhD thesis, University of Cologne (2001).

## 4. Epitaxial growth of Pt thin film and Deposition of Perpendiculary magnetized Co/Pt bilayer depending on Pt crystal structure

本論文ではエピタキシャル成長された Pt を多結晶構造の Pt との比較することで結晶性から由来するスピン緩和メカニズム及び SOT の特徴を導き出している。従って Pt のエピタキシャル成長は本論文のキーワードであり、本章ではここで行った Pt の成長条件及び結晶性評価の結果について述べる。まず 4.1 では、Pt のエピタキシャル成長が得られる具体的な条件を示し、結晶構造を評価するため行った結晶評価の結果を示す。本構造は第 6 章で紹介するスピン緩和の実験と関連する。次に、4.2 ではエピタキシャル Pt 上に Co を成長することで得られる垂直磁気異方性を持つ Pt/Co の成膜について説明する。第 7 章及び第 8 章で行った SOT の実験は 4.2 で得られた試料構造を基に行う。

### 4.1 Epitaxial growth of Pt thin film

- 基板の選択

3.2.1 で紹介したように、エピタキシャル成長のためには成長する金属と格子定数が近い物質を基板として選ぶことが重要である。本研究では Pt のエピタキシャル成長を目標としているため、Pt の格子定数( $a_{Pt} = 3.925 \text{ \AA}$ )を考慮した上 MgO(格子定数  $a_{MgO} = 4.220 \text{ \AA}$ )を基板として選択した[1, 2]。Pt と MgO 間におけるミスフィット  $m$  は

$$m = \left| \frac{b - a}{a} \right| \times 100 = \left| \frac{3.925 - 4.220}{4.220} \right| \times 100 = 6.99 (\%) \quad (4.1)$$

となり、エピタキシャル成長を期待できる。

それから Pt は FCC 構造(Face centered cubic)を取っており、最密面は(111)となる。従って(111) 面沿って成長すると最も安定であると考えられ、基板の面方位として (111) 面を選んだ。

- 成長温度

本研究において成長温度は  $500^\circ\text{C}$  設定した。ミスフィットを小さくすることが高温成長の主な目的であるが、Pt と MgO の体積熱膨張率はそれぞれ

$$\alpha_{Pt} = 27.6 \times 10^6 (K^{-1}), \quad \alpha_{MgO} = 31.2 \times 10^6 (K^{-1})$$

となり[3, 4]、MgO の体積熱膨張率が Pt の方より高い。つまり同じ温度変化であれば、室温より高温で MgO と Pt 間のミスフィットは大きくなってしまう。しかしながら高温で成長した結果がより良いエピタキシャル成長となる。この原因として、高温にお

ける Pt 粒子の運動が考えられる。室温成長だとスパッタされた Pt は運動エネルギーが低いのでその場所から移動できないが、高温成長だと最も安定な位置に動き出す。従って最密層である (111) 面方位に成長できるのである。

- その他の条件

上記以外のスパッタ装置で制御できる条件として、スパッタチャンバーの真空度、Ar ガスの流量、出力パワーなどが挙げられる。

真空度は可能な限り良い条件で成長を行った。本研究で使用したスパッタ装置はベース真空度が約  $1.0 \times 10^{-7}$  (Pa) まで維持できる仕様を持っているが、500°C まで加熱するとチャンバー内の真空度が  $1.0 \times 10^{-5}$  (Pa) まで悪化してしまう。エピタキシャル成長をするためには加熱後しばらく待機し、 $7.0 \times 10^{-6}$  (Pa) 以下で成膜に移ることが望ましい。

それから Ar ガスの流量や出力パワーは主に成長レートに関連するが、両方のパラメータの影響を調べることはあまり効率的ではないため Ar ガスの流量は固定し、出力パワー依存性から最も良い条件を探した。結果的に用いた条件は、

Ar ガスの流量: 15.0 sccm, 出力パワー: 45 W

である。ただし成長レートはスパッタ装置の環境によって変わる可能性が高いため、2 ヶ月に一度は確認する方が良い。

#### 4.1.1 XRD

- 出力パワー依存性

スパッタ時の出力パワーは Ar イオンの運動エネルギーに影響し、成長レートを決める重要な要因の一つである。エピタキシャル成長を行うことに当たって、最も望ましい出力パワーを調べた。なお、出力パワーは 30W, 45W, 60W の 3 つの条件とした。

Fig.4.1 に示されたように出力パワーによらず、MgO (111) 基板に対して Pt (111) 面が規則正しく成長されていることが分かる。次は Pt (222) 面における X-RD のピークに注目してみる。全体的に MgO 基板のブロードなピークに隠れてはいるが、45W ではピークが突出しているのに対し 30W と 60W ではピークが立っていると判断し難い。その原因としては定性的にしか説明ができないが 60W では成長レートが速すぎるため (111) 面方位を保持したまま成長し続けることが難しいことと、30W では成長レートが遅いため MgO 基板との界面で (111) 面に上手くマッチングできないことが考えられる。説明がすくし不足していると思うが、出力パワー依存性を取った理由は成長レートの最適条件を調べることであってそれ以上の理由はないため、これ以上は議論しない。



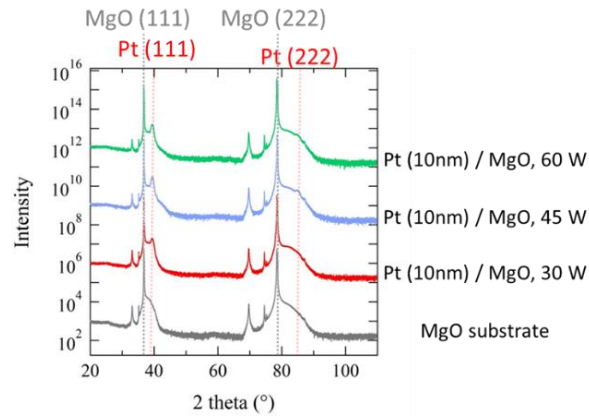


Fig.4. 1 Sputtering power dependence of Pt crystallization to (111)

- アニール(annealing)の影響

成長前処理は全ての薄膜成長において最も基本的なことである。通常成長前処理というと基板洗浄及びアニールが挙げられる。基板洗浄によって有機不純物などを除し、アニールで水分の蒸発及び結晶性を整える。本研究ではMgO基板を結晶成長メーカーから購入しており、洗浄済の10mm角でへき開された基板であるため特に基板洗浄はせず、開封後すぐスパッタチャンバーに入れた。その後150℃でアニールを行っており、アニールによるPtの結晶性に関する結果をFig.4.2に示す。

下図から、アニールに関係せずPt (111) 面方位が綺麗に観測されたことが分かる。アルコールやアセトンなどによる基板洗浄を実施してなく、MgO基板が規則正しい結晶性を持っていたためアニールによる効果あまり現れなかったと考えられる。ただし前室において1時間ほどアニールすることによって成長チャンバーに入れたときに急激に真空度が落ちることを防げるため、毎回アニールすることを推奨する。

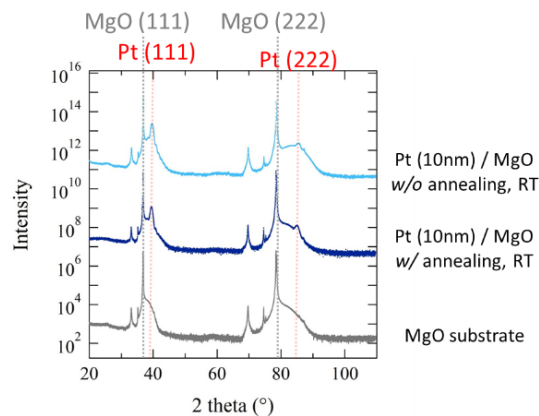


Fig.4. 2 Dependence of annealing effect before deposition in Pt on MgO(111)



- 基板温度依存性

ここでは成長温度による Pt 薄膜の結晶性を調べる。比較のために、室温と 500°C でそれぞれスパッタを行った。Fig.4.3 のように X – RD の結果からだと温度によらず綺麗に(111) 面方位で成長されていることが分かる。室温および 500°C における Pt (111) 面の面間隔を計算してみると、

$$2d\sin\theta = n\lambda \rightarrow d = \frac{\lambda}{2\sin\theta} \quad (4.2)$$

本研究で用いた CuK $\alpha$ の波長は $\lambda_{K\alpha} = 1.543 \text{ \AA}$ であり、

$$d_{RT} = \frac{1.543}{2\sin(39.41^\circ \div 2)} = 2.288 (\text{\AA}) \quad (4.3)$$

$$d_{500^\circ\text{C}} = \frac{1.543}{2\sin(39.46^\circ \div 2)} = 2.285 (\text{\AA}) \quad (4.4)$$

となる。一方バルク状態の Pt(111)面の面間隔は格子定数から求めると $d_{bulk} = 2.266 (\text{\AA})$ となり、薄膜成長において(111)面の面間隔が伸びとことを意味する。また 500°Cより室温における面間隔が若干大きいことが分かる。Pt のポアソン比( $\nu = 0.38$ ) [5]を用いるとそれぞれの格子定数が計算でき、

$$\nu = -\frac{\varepsilon_y}{\varepsilon_z} = -\frac{\varepsilon_x}{\varepsilon_z} \quad (4.5)$$

$$\varepsilon_{z,RT} = \frac{d_{RT} - d_{bulk}}{d_{bulk}} = \frac{2.288 - 2.266}{2.266} = 0.009709 \quad (4.6)$$

$$\varepsilon_{y,RT} = -\nu * \varepsilon_z = -0.003689 = \frac{a_{RT} - a_{bulk}}{a_{bulk}} \rightarrow a_{RT} = 3.911 (\text{\AA}) \quad (4.7)$$

同様に、

$$\varepsilon_{z,500^\circ\text{C}} = \frac{d_{500^\circ\text{C}} - d_{bulk}}{d_{bulk}} = \frac{2.285 - 2.266}{2.266} = 0.008385 \quad (4.8)$$

$$\varepsilon_{y,500^\circ\text{C}} = -\nu * \varepsilon_z = -0.003186 = \frac{a_{500^\circ\text{C}} - a_{bulk}}{a_{bulk}} \rightarrow a_{500^\circ\text{C}} = 3.912 (\text{\AA}) \quad (4.9)$$

となる。以上の計算から、薄膜成長によって格子定数は全体的に小さくなるが、高温で成長することで格子定数を少し増加させられることを分かった。ただしこの結果だけでは室温成長した Pt / MgO 試料と高温成長した Pt / MgO の結晶性を単純比較することはできず、他の評価方法で確かめる必要がある。

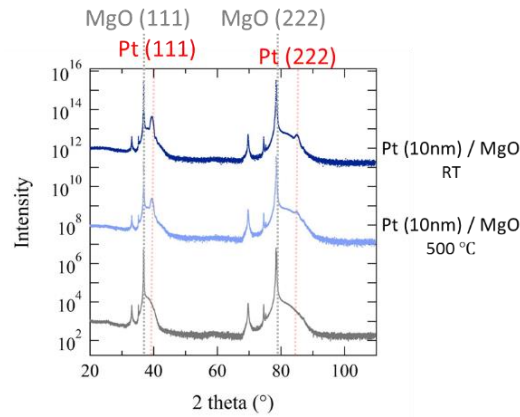


Fig.4. 3 Deposition temperature dependence of Pt on MgO (111)

- GaAs 基板との比較

GaAs の格子定数は  $5.653 \text{ \AA}$  であり、Pt とのミスマッチが大きすぎるためエピタキシャル成長を期待できない。ここではMgO 基板上的 Pt との比較のために成長を行った。Fig.4.4 のように、Pt は基板に関係せず全体的に(111) 面方位に成長されていることが分かる。しかし、基板のピークとの比較を行うと GaAs 上の Pt はエピタキシャル成長ではないことが容易にわかる。Pt / MgO (111) の場合は Pt (111) 面方位のピークしか出ていないのに対し、Pt / GaAs (100) のときには Pt (100) 面方位のピークが Pt (111) 面方位のピークと同時に観測される。

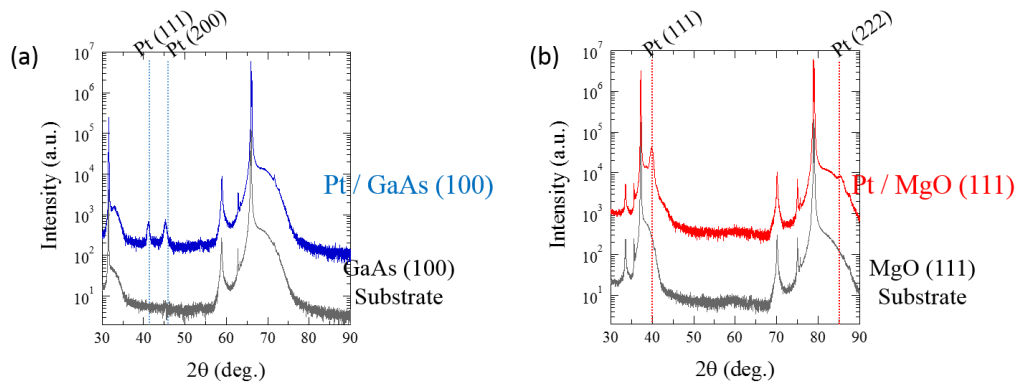


Fig.4. 4. XRD results for (a) Pt/GaAs (blue dots) and (b) Pt/MgO (red dots). For comparing to the substrate, the corresponding XRD peaks of each substrate are described under the Pt peaks.

以上の X-RD の評価から、室温及び 500 °C 下で MgO (111) 基板上に成長した Pt が (111) 面方位を持ってエピタキシャル成長している可能性が高いと判断される。ただし X-RD の評価だけでは未だ不十分であり、上記の二つの試料に関して更なる結晶評価を行う。

#### 4.1.2 RHEED results

3.2.2 で説明したように、RHEED を用いると表面の結晶性を可視的に調べることができる。エピタキシャル成長の場合は基板の結晶性に引き続いて成長するため、基板のパターンとの比較を行うことは大変有用な結果となる。

本項目では MgO (111) 基板の RHEED パターンを調べた。XRD の結果からエピタキシャル成長されている可能性が高い室温及び 500 °C 下で MgO (111) 基板上に成長した Pt を、成膜後直ちに RHEED パターンの観測を行った。MgO (111) 基板は Fig 4.5 (a) に現れているように非常に良い結晶性を持っており、綺麗なストリークパターンが得られた。次に、MgO (111) 基板上室温成長を行った Pt のパターンを見ると (Fig 4.5 (b))、同心円のようなパターンが得られた。この結果からだと少なくとも表面状態が単結晶ではないと考えられる。最後に高温成長を行った Pt のパターンではストリークの様子が観測された (Fig 4.5 (c))。その強度は MgO 基板の方と比較すると弱いですが、明らかにストリークのパターンを示している。更にストリーク同士の間隔が Pt と MgO 基板において同様であり、基板の結晶方位に沿って成長されたと考えられる。

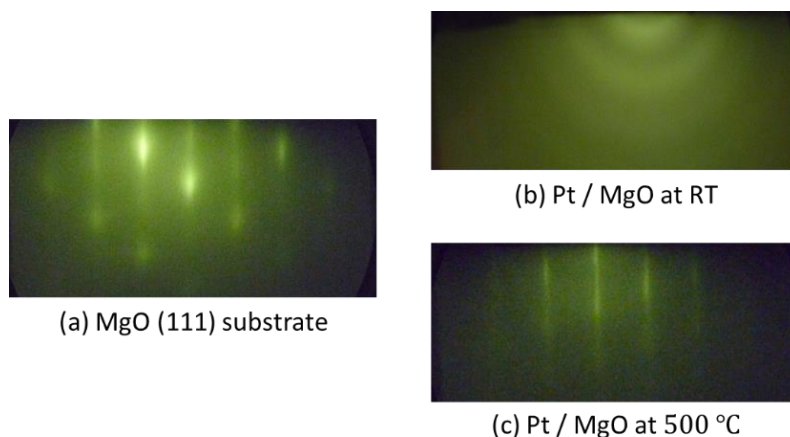


Fig.4. 5. RHEED pattern of (a) MgO (111) substrate, (b) Pt on MgO(111) grown at RT, (c) Pt on MgO(111) grown at 500 °C

### 4.2.3 In plane XRD

XRD の結果から単結晶のピークが得られたとしても、面内における配向が規則正しく配列されていないとエピタキシャル成長とは言えない。面内の結晶性を観測する方法として In plane XRD が挙げられ、本研究では MgO および Pt において実験を行った。

まず MgO (111) 面と Pt (111) 面における結晶構造を Fig. 4.6 に表す[2]。

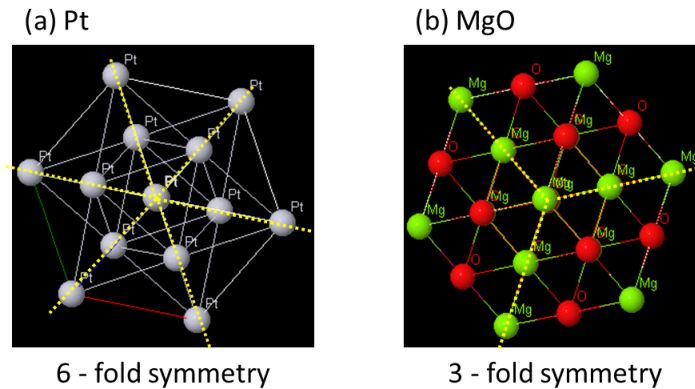


Fig.4. 6 Calculated(ideal) in plane crystal orientation of (a) Pt (111) and (b) MgO (111)

Pt は典型的な FCC 構造を持っているため、(111) 面における結晶構造は Fig. 4.6 (a) のような 6 回対称性を持つ。一方、MgO は NaCl 型構造を有しており Mg と O の FCC 構造が一層間隔で交互に並んでいる構造である。従って(111) 面における結晶構造は Pt と似ているが 6 回対称性にはならず、3 回対称性を持つ。

故に、面内方向に X 線を照射しながら試料を回転させると対称性に応じてピークの本数が得られる。その結果を Fig. 3.7 に示す。Fig. 3.7 の左図は垂直方向から見た回折強度(垂直投影図)を、右図は回転角度と回折強度の関係をそれぞれ表している。MgO(111) 基板は 3 本のピークを、Pt は 6 本のピークを持っていることが明らかにわかる。ただし室温成長した Pt と高温成長した Pt の垂直投影図を比べると、室温成長した Pt の方では 6 本のピーク以外の所でピークの乱れのような結果が得られた。RHEED と関連して考えると、恐らく表面状態の結晶性の乱れから生じていると推測される。

以上の結果は高温成長した Pt / MgO (111) 試料の面内結晶性が整えていることを示しており、XRD 及び RHEED の結果と総合して考えるとエピタキシャル成長されている可能性が非常に高い。

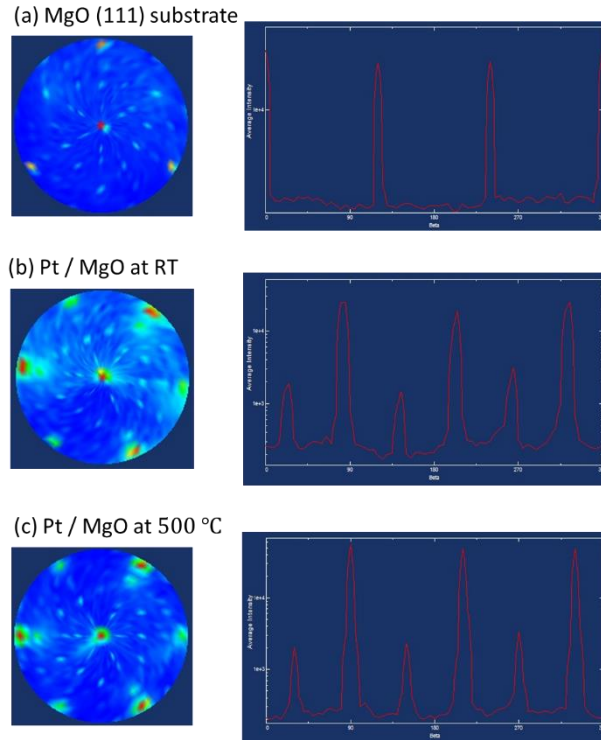


Fig.4. 7. Obtained results of in plane XRD of (a) (a) MgO (111) substrate, (b) Pt on MgO(111) grown at RT, (c) Pt on MgO(111) grown at 500 °C. On each result, left graphic indicates vertical projection and right graphic shows the peaks as a function of azimuthal angle.

#### 4.2.4 TEM

最後に TEM の観察結果を紹介する。試料断面の TEM を観察することで表面を始め基板と成長金属の界面における結晶性を評価することができる。更に断面の垂直方向に X 線を照射することで電子回折図形(SAED; Selected Area electron diffraction)が得られ、その回折パターンから結晶性だけではなく基板とのマッチングも評価できる。

Fig 4. 8 は試料断面の TEM 観察結果である。成長温度に関わらず界面における配向性が良く、両方ともエピタキシャル成長されている。ただし室温成長した Pt / MgO (111)については表面の平坦さが悪いことが観測された。表面の平坦さの違いが RHEED 及び In plane X – RD での乱れた結果の原因であると考えられる。

次に SAED の結果(Fig 4. 9)の分析に移る。各試料の左図は Fig 4. 8 より大きいスケールの断面観察結果である。室温成長した Pt / MgO (111)は表面の平坦さは良くないが、全体的に中断されることなく成膜されている。一方室温成長した Pt / MgO (111) は滑らかな表面を有しているが、アイランド状(island stage)に積まれていることがみられる。この現象の原因としてはスパッタ時の成長温度が挙げられる。成長温度が高いほどスパッタされた原子の運動エネルギーも増加し、そのエネルギーを基板に与えながら動きまわる。いくつかの原子が集まり、原子集団などを作りながら表面より捕獲されやすい場所に核を形成する。この核は次々と到着する原子や、隣の核と合体して成長し、ある臨界値以上になると安定になる。基板上には核が多数で互いに接触、合体してアイランド状構造を作るのである。しかし温度が低いと核生成ができ難く、アイランド状構造が現れない[6]。

Fig 4. 9 の右図は基板と Pt における SAED の回折パターンである。エピタキシャル成長されている場合は基板と同じ位置で回折パターンが観測されるはずである。結果から明らかであるように、温度に関係なく両方の試料の回折パターンが基板の回折パターンと一致した。

以上の結果から判断すると、高温成長した Pt / MgO (111) はエピタキシャル成長されていることに間違いない。また室温成長した Pt / MgO (111) に関しては表面以外はエピタキシャル成長されていると考えられるが、表面において結晶性の乱れがあると考えられる。



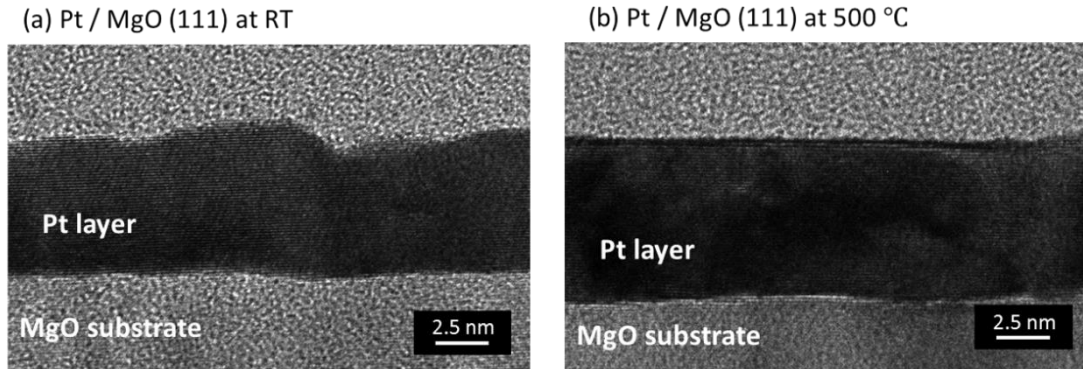


Fig.4. 8 Cross sectional TEM results for (a) Pt on MgO(111) at RT, (c) Pt on MgO(111) at 500°C

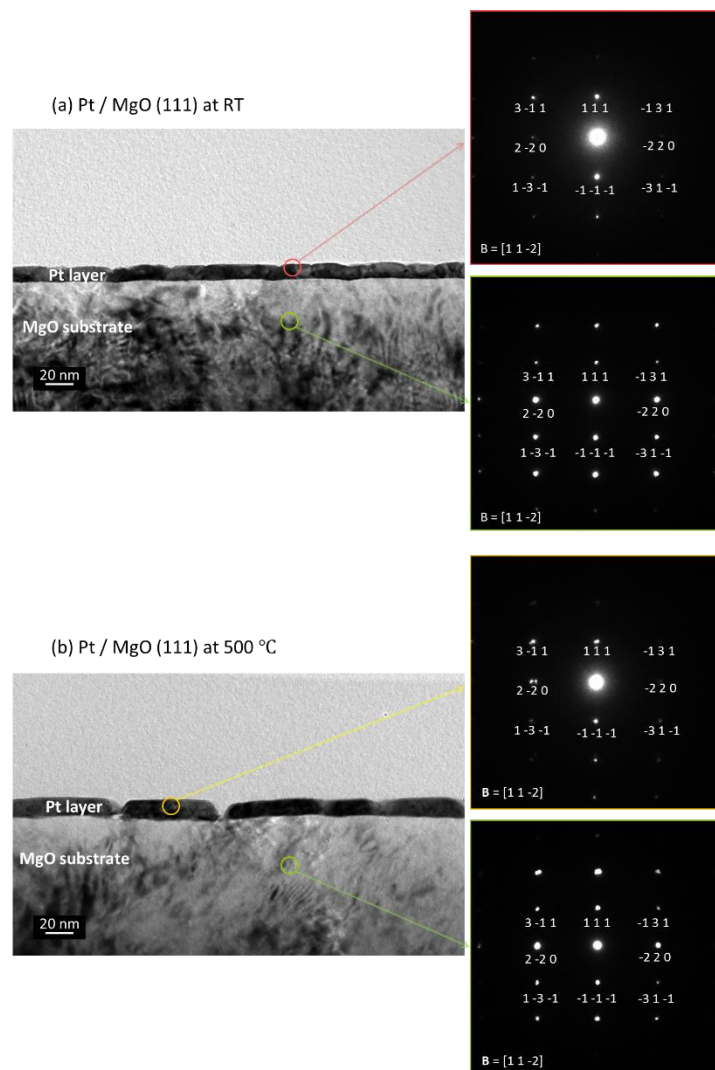


Fig.4. 9 SAED results for (a) Pt on MgO(111) at RT, (c) Pt on MgO(111) at 500 °C

## 4.2 Deposition of Perpendicular magnetized Co/Pt bilayer depending on Pt crystal structure

HM/FM で構成された垂直磁化膜を用いると、HM から現れる SOI を SOT として観測することができると報告されている[7-9]。本研究では 4.1 で得られた Pt のエピタキシャル成長の知見を拡張することによって、Pt の結晶性が異なる膜上に Co の垂直磁化膜の成長を行った。

界面における界面磁気異方性(Interfacial anisotropy)を用いると、Pt や Pd 薄膜上に Co を垂直磁化膜として成長できることが 1980 年代から報告されている[11-16]。垂直磁気異方性(perpendicular magnetic anisotropy: PMA)をもたらす界面磁気異方性は Pt や Pd が (111) 方位に配向されている場合（多結晶でも構わない）HCP 構造を持つ Co が (0001) 方位に成長されることから容易に得られる。従って、MgO(111)上にエピタキシャル成長された Pt(111)上では簡単に PMA を持つ Co を成膜することができる。

次に、多結晶 Pt 構造における PMA を持つ Pt/Co の成膜の考え方について述べる。MgO と Pt の格子定数のミスマッチングが非常に小さいことを考えると、MgO(111)だけではなく MgO(100)上にも Pt をエピタキシャル成長できると予想できる[1]。ただし、この場合 Pt は(100)方面に成長される。次に、Pt は FCC 構想として(111)面を安定面として取ることから、温度を下げてあげることによって(100)方面から(111)面に徐々に変調可能であると期待される。最後に、Co を成長することで PMA が得られる。

以上の試料構造を模式図として表すと、Fig.4. 10 のようになる。

上記のアイディアに基づき、Pt の結晶性が異なる膜上に Co の垂直磁化膜の成長を行った。これからは具体的な結晶性の評価の結果に基づき議論する。

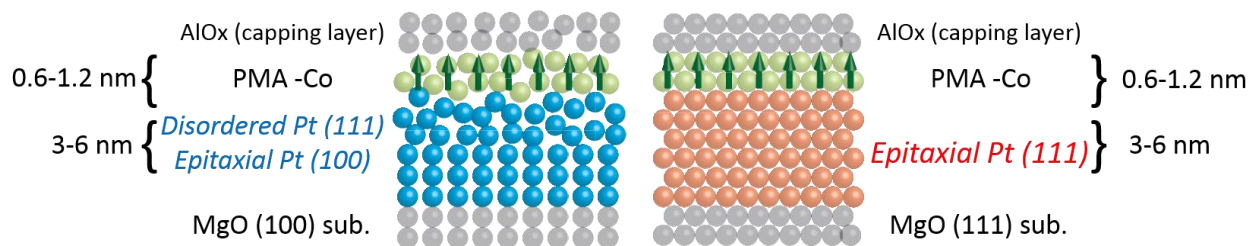


Fig.4. 10 Brief illustrations about Co/Pt bilayers with different Pt crystal structures.



## 4.2.1 XRD

本項の XRD 測定には、MgO(100), MgO(111) 基板の上に 200°C で Pt(3nm) 及び Co(0.6nm) を成膜した試料を用いた。また Co 成膜後の Pt 結晶構造の評価を明らかにするために、MgO(100), MgO(111) それぞれの基板上に Pt だけを 200°C で成膜(10nm) 試料を比較対象として用意した。

Fig. 4. 11 (a), (c) で示しているように、Pt だけの試料は MgO のそれぞれの結晶方位に従ってエピタキシャル成長されている結果が観測される。しかし Pt/MgO(100) の上に Co を成長すると、Pt(100) だけではなく Pt(111) のピークが測定された。更にこの Pt(111) のピークは非常にブロードな形を示すことから、成長された Pt(111) 層は大きなひずみを受けていると考えられる。このような Pt(111) のピークの現れは Pt(222) としても観測されることが容易にわかる (Fig. (a) and (b))。それに対し、Pt/MgO(111) の場合は Co を成膜した後もピークの大きな変化は現れず、(111) 方位で連続的に成長されることが明らかに見える。

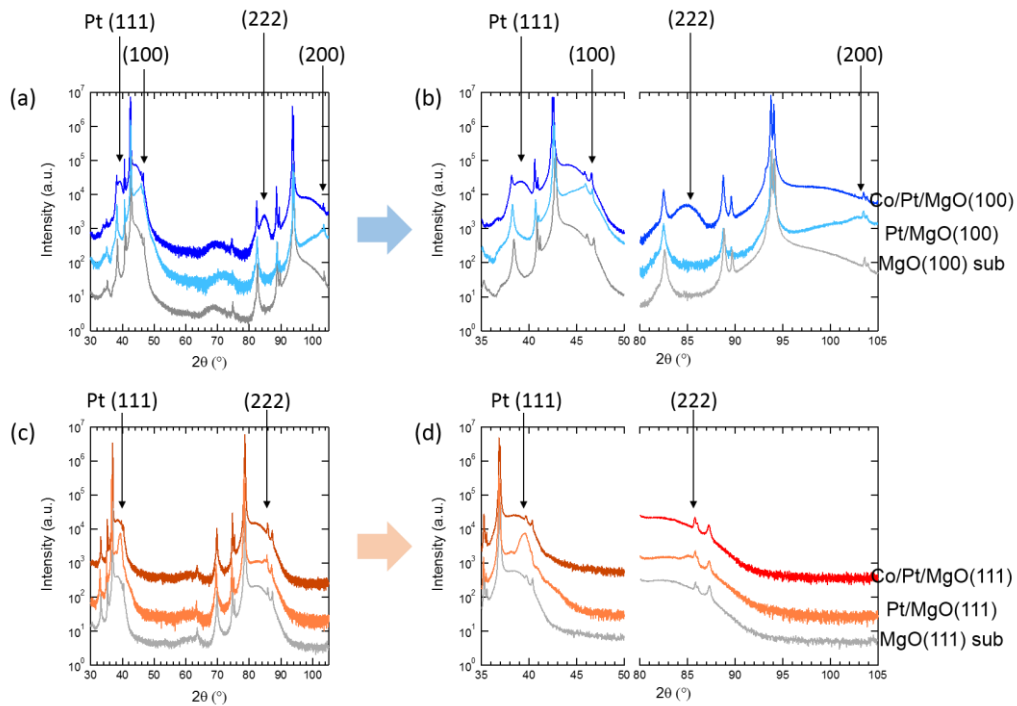


Fig.4. 11 Comparison of crystal orientation through XRD results (a) Co/Pt on MgO(100) and (c) Co/Pt on MgO(111). In (a), dark blue line, light blue line and gray line indicates Co/Pt/MgO(100), Pt/MgO(100) and MgO(100) substrate, respectively. In (c), dark red line, light red line and gray line indicates Co/Pt/MgO(111), Pt/MgO(111) and MgO(111) substrate, respectively. (b) and (d) corresponds to zoom-in result of (a) and (c).

### 4.2.2 RHEED

4.1.2 と同様に、膜の成長直後 RHEED を測定することによって更なる結晶情報について探った。Fig. 4. 12 に RHEED 結果が示されている。Co/Pt/MgO(100)の場合、Pt 層の成膜後綺麗なストリークパターンを表しているが、次に Co を成膜すると、ストリークが見えてはいるが全体的にぼやけた様子である。Pt 層の成長温度が 500°C の場合は 200°C の場合より明らかな規則格子のパターンが観測されるが、この際は Co 成膜後 PMA が得られなかった。これに関する詳しい議論は 4.2.5 で説明する。それに対し Co/Pt/MgO(111)の場合、Pt 及び Co 層において全て規則格子のパターンが観測されていることが容易にわかる。

以上の結果は前項における XRD の実験から得られた結晶情報の結果と定性的に一致すると判断できる。

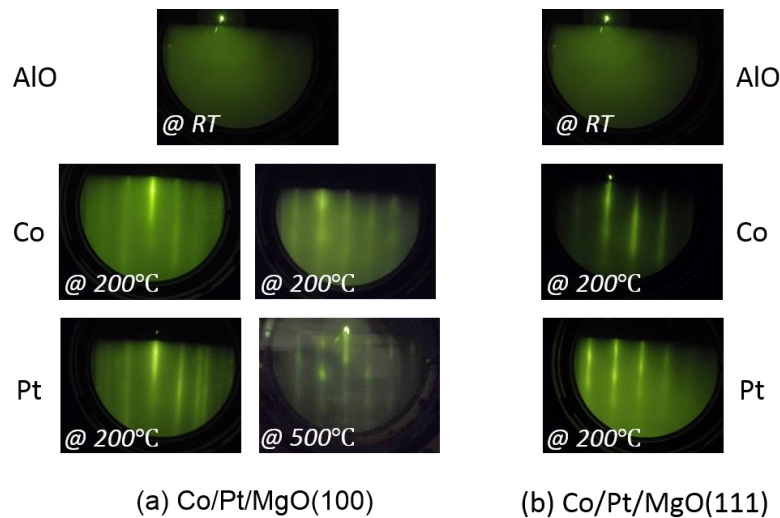


Fig.4. 12 RHEED pattern of each layer after the deposition for (a) Co/Pt/MgO(100) and (b) Co/Pt/MgO(111)

### 4.2.3 In plane XRD

Co/Pt/MgO(100)および Co/Pt/MgO(111)における Pt 層の結晶性の違いは In plane XRD の結果からより明らかになる。Fig. 4. 13 (a)からわかるように、Co/Pt/MgO(111)の結果は 4.1.3 で得られた結果と相似した 6 回対称性が観測される。しかし Co/Pt/MgO(100)ではよりブロードな形をもつ 12 回対称のピークが得られると共に、その強度が非常に落ちていることが見える。これは MgO(100)上に成長された Pt 層が(111)方位に沿って成長されているが、その配向性が非常に乱れている結果を表しており、XRD の結果におけるブロードな Pt(111)のピークに相当すると考えられる。また面内における対称性は本結果を極座標で表すとより明らかになる。

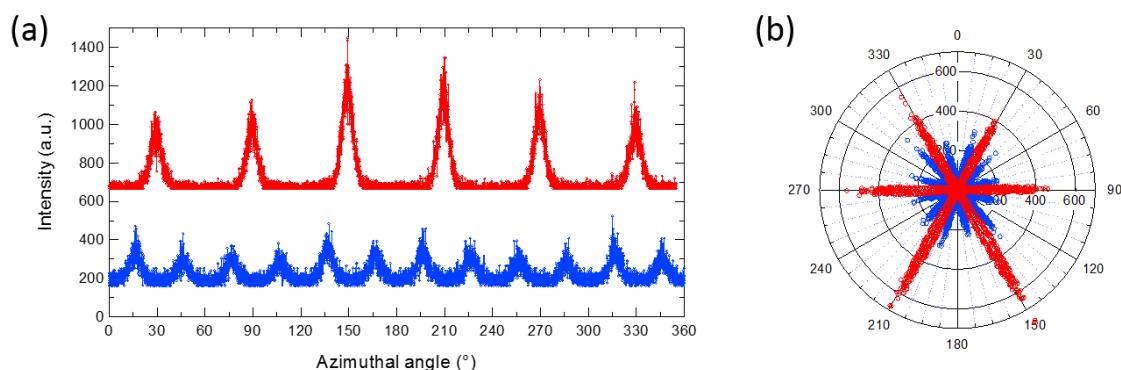


Fig.4. 13 In plane XRD results for Co/Pt/MgO(100) (blue dots) and Co/Pt/MgO(111) (red dots). (a) shows intensity as a function of azimuthal angle and (b) corresponds to its polar plot.

#### 4.2.4 TEM

最後に TEM で観測された Co/Pt/MgO(100)および Co/Pt/MgO(111)における結晶構造を説明する。Fig. 4. 14 の (a)と(b)にそれぞれの全体的な TEM 写真が紹介されている。より定量的な比較を行うために、MgO 基板及び Pt レイヤーに電子線を照射し SAED を観測した。

まず Co/Pt/MgO(100)の試料をみると、MgO 基板では(100)方位を示すパターンが得られたのに対し、Pt レイヤーでは回折パターンが一致していないことが明らかである (Fig. 4. 15)。Pt レイヤーにおけるパターンをよくみると、乱れてはいるが(111)方位の回折パターンを表していることが分かった。以上の結果は XRD、RHEED、In plane XRD の一連の結晶構造評価で得られた情報と一致していることから、Co/Pt/MgO(100)における Pt は MgO 基板の界面では(100)面に沿って成長されるが、厚くなるにつれて乱れた形で(111)方位になると判断できる。

一方、Co/Pt/MgO(111)の試料では MgO 基板と Pt レイヤーの回折パターンが明確に同様であることが分かり (Fig. 4. 16)、基板の界面から Co 層の界面にわたってエピタキシャル成長されているといえる。

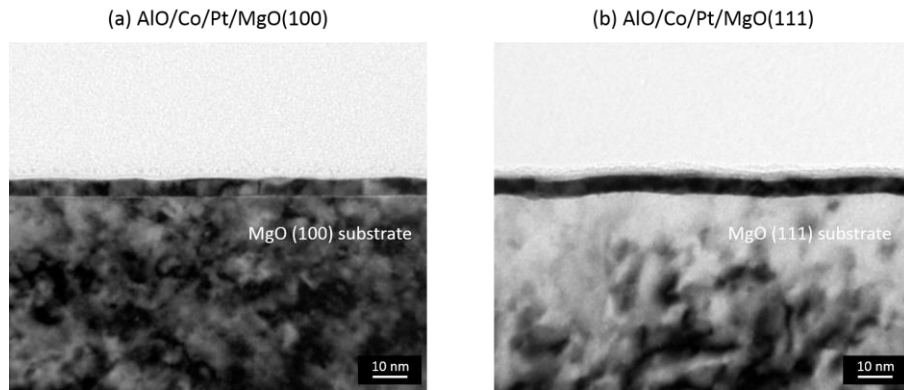


Fig.4. 14 Cross sectional TEM results for (a) Co/Pt/MgO(100) and (b) Co/Pt/MgO(111)

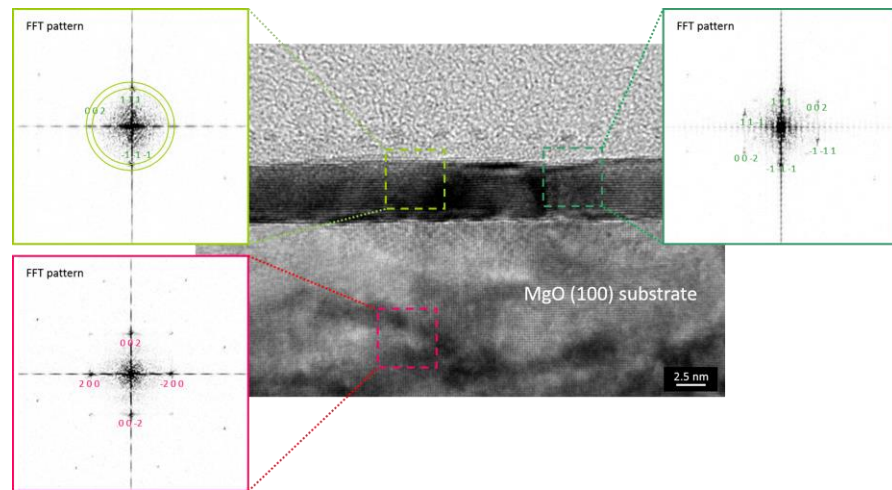


Fig.4. 15 SAED patterns for Co/Pt/MgO(100)

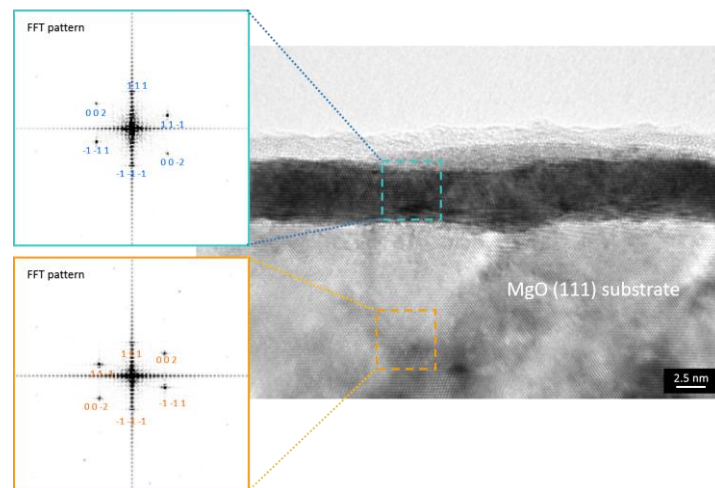


Fig.4. 16 SAED patterns for Co/Pt/MgO(111)

## 4.2.5 MOKE

本章で取り上げている Pt の結晶性が異なる Co/Pt/MgO(100)および Co/Pt/MgO(111)の成膜は、PMA を持つことを目指している。従って結晶性評価とともに磁気異方性を確かめる必要があり、ここでは MOKE(Magneto-Optic Kerr Effect)を用い各試料の磁気異方性を調べた。

MOKE の簡単な原理について述べる[17]。偏向された光を試料の表面に照射すると、その照射光が試料表面に存在する磁化によって回転される。反射光の偏向の変化を観測することで磁化状態を評価することができる。また外部磁場を印加しながら MOKE の測定を行うと、磁場の方向に応じた異方性を知ることができる。

ここでは面直方向に磁場を印加する Polar MOKEを行うことで、PMA を調べた。Fig. 4.17 に示されているように、Co/Pt/MgO(100)及び Co/Pt/MgO(111)の両方の膜とも明確な PMA を有していることがわかる。Green dots でプロットされている結果は Co/Pt/MgO(100)において Pt を 500°Cで成長した試料であるが、PMA が明確ではなく、面内の磁気異方性が混ざっている様子を表している。本結果は 4.2.2 で簡略に示した RHEED の結果と関連付けて説明することができる。つまり、Pt 上の Co を成膜することで Pt 層が(100)から(111)に変化されていくと予想できるが、500°Cの場合界面において非常に結晶性が良い(100)面が成長されたため(111)層に十分変態されなかったと考えられる。従って Co と Pt の界面で生じる界面磁気異方性が減少され、PMA が得られなかったことになる。

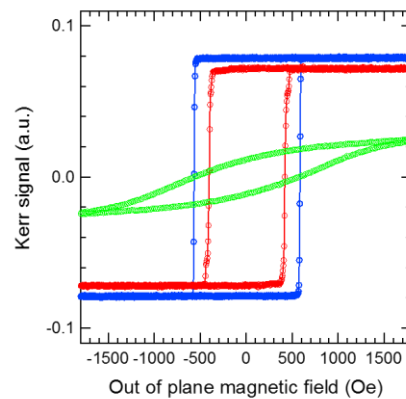


Fig.4. 17 Polar MOKE measurement in Co/Pt/MgO(100) (blue dots) and Co/Pt/MgO(111) (red dots). Green dots indicates Co/Pt/MgO(100) where Pt layer was deposited at 500°C.



### 4.3 Conclusion

本章ではまず Pt のエピタキシャル成長に関する条件及び結晶評価について述べ、次にそれを応用し Pt の結晶性が異なる PMA を持つ Co/Pt の成長及び結晶評価を行った。

エピタキシャル成長には成長する金属と基板の格子定数のマッチングが大変重要であることが GaAs 基板と MgO 基板上に Pt を成長したときの X 線回折法の結果から容易にわかる。また成膜時の成長温度を高温にすることで、MgO 基板と Pt 間のミスマッチングを減らせることが明らかになった。XRD 測定から Pt/MgO の面直方向における結晶性が得られ、室温及び高温で成長した試料が(111)面に沿って配向していることが分かった。また成長後 RHEED 法によって表面の結晶性が調べられ、MgO 基板および高温成長された Pt は同様な表面結晶状態を持っているが、室温成長された Pt は単結晶ではないと考えられる。しかし XRD 測定と RHEED 法だけでは面内方向に対する結晶性を調べることができず、そのため In plane XRD 測定を行った。高温成長及び室温成長された Pt / MgO は面内に X 線を照射したときその角度に対して 6 回対称性及び 3 回対称性を表し、面内方向において結晶性が整えられていることが明らかになった。最後に TEM 観察を行い、Pt のエピタキシャル成長を確かめた。SAED 法から得られた基板と Pt の回折パターンの結果は大変一致しており、MgO 基板上 Pt がエピタキシャル成長されていると判断づけられる。

以上の結果を踏まえ、6 章で行うスピン緩和メカニズムに関する実験では、単結晶の試料として 500°C で MgO(111)上に成長された Pt を、多結晶の試料として室温で GaAs 上に成長された Pt を用いる。

また以上のエピタキシャル成長を拡張すると MgO 基板を決めることで Pt の結晶性が異なる PMA を持つ Co/Pt の成長ができると予想され、MgO(100)および MgO(111)基板を用いその成膜を行った。Co は Pt(111)の配向膜上で薄く成長されると強い界面磁気異方性を示すことから、エピタキシャル成長された Pt(111)上では結晶性を保ったまま PMA の Co/Pt が得られるが Pt(100)では結晶性が乱れ、徐々に(111)方位に変態していくことが明らかになった。以上の結果は XRD の結果から明らかにわかり、Co/Pt/MgO(100)では Pt(100)と同時にブロードな Pt(111)のピークが得られたことに対し、Co/Pt/MgO(111)では Pt(111)だけか観測された。更に In plane XRD 測定から面内の対称性を調べ、Co/Pt/MgO(100)では非常に乱れた 12 回対称性を示しているが、Co/Pt/MgO(111)では明確な 6 回対称性が得られることを確かめた。TEM 測定からも同様な結果が得られた。最後に MOKE により PMA の有無を調べることで両方の膜とも PMA を有していることが明らかになった。

故に、Co/Pt/MgO(111)の Pt 層はエピタキシャル成長を保ったまま Co が成長されており、Co/Pt/MgO(100)の場合は Co を成膜することで Pt が(100)方位から(111)方位に変態され多結晶構造を有していると判断できる。従って、第 7 章及び第 8 章で行う SOT の評価及び SOT による磁化反転の測定には多結晶の試料として Co/Pt/MgO(100)を、単結晶資料と単結晶資料として Co/Pt/MgO(111)を用いる。

## Reference

- [1] B. M. Lairson, M. R. Visokay, R. Sinclair, S. Hagstrom, and B. M. Clemens, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 1390 (1992).
- [2] <http://crystdb.nims.go.jp/crystdb/>.
- [3] American institute of physics handbook, McGraw-Hill, New York. (1963).
- [4] O. L. Anderson and K. Zou, *J. Phys. Ref. Data*, **19**, 1 (1990).
- [5] <http://periodictable.com/Elements>
- [6] 薄膜作成の基礎、麻蔭立男、日刊工業新聞社 (2005).
- [7] J. Kim, J. Sinha, M. Hayashi, M. Yamanouchi, S. Fukami, T. Suzuki, S. Mitani and H. Ohno, *Nat. Mater.* **12**, 240 (2013).
- [8] M. Hayashi, J. Kim, M. Yamanouchi, and H. Ohno., *Phys. Rev. B*, **89**, 144425d (2014).
- [9] K. Garello, I. M. Miron, C. O. Avci, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel, S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin and P. Gambardella., *Nat. Nano.*, **8**, 587 (2013).
- [10] P. F. Carcia et al., *Appl. Phys. Lett.* **47**, 178 (1985)
- [11] P. F. Carcia, *J. Appl. Phys.* **63**, 5066 (1988).
- [12] M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder, and J. J. de Vries, *Rep. Prog. Phys.* **59**, 1409 (1996).
- [13] R. L. Stamps, L. Louail, M. Hehn, M. Gester, and K. Ounadjela, *J. Appl. Phys.* **81**, 4751 (1997).
- [14] M. Kisielowski, A. Maziewski, M. Tekielak, J. Ferré, S. Lemerle, V. Mathet, and C. Chappert, *J. Magn. Magn. Mater.* **260**, 231 (2003).
- [15] J. W. Lee, J. R. Jeong, S. C. Shin, J. Kim, and S. K. Kim, *Phys. Rev. B* **66**, 172409 (2002).
- [16] H. Stillrich, C. Menk, R. Frömter, and H. P. Oepen, *J. Appl. Phys.* **105**, 07C308 (2009).
- [17] Introduction to magnetic materials(2<sup>nd</sup> edition), B.D Cullity and C.D Graham, WILEY (2009).

## 5. Magnetoresistance measurement for quantitative evaluation of Spin relaxation and Spin orbit torque

本章では、本研究で用いた実験の原理及び測定方法について詳しく述べる。2 章で説明した SOI と関連したパラメータを定量的に導き出すために、本研究では磁気抵抗 (Magnetoresistance: MR) を利用した。磁気抵抗測定にも試料構造や測定の手法によって得られる物理現象が異なるため、その原理や条件について説明する。

5.1 ではスピン緩和の評価に用いる弱局在/弱反局在現象(weak localization(WL)/ weak antilocalization(WAL))について説明する。次に、5.2 では SOT の評価手法となるハーモニク測定法(Harmonic measurement)の説明を行う。

### 5.1 Quantum interference effect

#### 5.1.1 Anderson localization

金属、半導体の伝導電子は結晶の周期的ポテンシャルに加えて、結晶格子の何らかの欠陥による不規則ポテンシャルの中を量子力学に従う粒子として運動する。自由度を 2 次元に制限された伝導電子も同様である。ポテンシャルの不規則性が強くなると、電子の状態は結晶全体に広がったものから、広がりが有限領域に局在した状態に変わる。局在現象の可能性は P. W. Anderson によって指摘され、アンダーソン局在 (Anderson localization) と呼ばれる[1]。

電気伝導度  $\sigma$  を Drude に従って表すと

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m} \quad (5.1)$$

ここで  $n$  は電子の濃度、 $e$  は電荷量、 $\tau$  は緩和時間、 $m$  は電子の質量である。

平均自由行程  $l$  はフェルミ速度  $v_F$  を用いて

$$l = v_F\tau \quad (5.2)$$

として良い。通常金属として考察できるには、フェルミ波数を  $k_F$  として

$$k_F l \gg 1 \quad (5.3)$$

の条件が必要である。この条件は、フェルミエネルギー  $E_F$  を用い

$$\frac{\hbar}{E_F\tau} \ll 1 \quad (5.4)$$

と書いてよい。不規則ポテンシャルが強くなると、電子は量子力学的な過程で拡散す



る(量子拡散)ことができなくなる。これが電子の局在である。波動関数の広がり(局在長)を $\varepsilon$ とし、系のサイズを $L$ とする。 $L \gg \varepsilon$ であるならば、系の一方の端から他の端まで広がった電子状態はないのだから、この系は絶縁体である。逆に  $L \ll \varepsilon$ であるならば、系は金属として振る舞う。

Mott は Eq.(5.3)が成り立たなくなる限界、 $k_F l = 1$ を境界にしてこれよりフェルミエネルギー $E_F$ が大きければ金属であり、小さければ絶縁体となると考えた。この境界エネルギーを移動度端(mobility edge)といい、この時の伝導率を最小金属電気伝導率(minimum metallic conductivity)  $\sigma_{min}$ と呼ぶ。電気伝導率は移動度端を境に $\sigma_{min}$ から 0 へ不連続的に飛ぶことになる[2]。

アンダーソン局在の理論の糸口を開いた Abrahams らによる局在のスケーリング理論(scaling theory of localization) は、コンダクタンスが系の大きさによってどのように変わるかを次のように推定した[3]。

一辺の長さが  $L$  の  $d$  次元の立方体を考え、そのコンダクタンスを  $L$  の関数として  $G(L)$ と書く。系が金属であれば、 $L$  によらない電気伝導率 $\sigma$ を持ち、コンダクタンスは断面積 $L^{d-1}$  に比例し、長さ  $L$ に反比例するから

$$G(L) = \sigma L^{d-2} \quad (5.5)$$

と表される。 $L$  を大きくしたとき、コンダクタンスが小さくなる傾向を示すならばそれは電子状態が局在し、系が絶縁体になることを意味する。

1 辺が $L_1$  の立方体のコンダクタンスを $g_1$  とし、1 辺を $v$  倍して $L_2 = vL_1$  としたときのコンダクタンス $g_2$  は $g_1$  と $v$  だけで決まると考える。これはスケーリング仮説と呼ばれる。その関数を

$$\frac{g_2}{g_1} = f(g_1, v) \quad (5.6)$$

と書くことにしよう。ここで  $v$  を連続変数として、この関係を微分方程式に書き換える。そのために、Eq.(5.6)の対数を取り、 $\log v$  で割って  $v \rightarrow 1$  の極限をとる。この時、左辺は

$$\lim_{v \rightarrow 1} \frac{\log(g_2/g_1)}{\log v} = \lim_{L_2 \rightarrow L_1} \frac{\log g_2 - \log g_1}{\log L_2 - \log L_1} = \left( \frac{d \log g}{d \log L} \right)_{L=L_1} \quad (5.7)$$

となる。右辺は $g_1$  だけの関数になるから、その関数を $\beta(g_1)$  と置いて、微分方程式

$$\frac{d \log g}{d \log L} = \beta(g) \quad (5.8)$$

が得られる。

次の議論より、 $\beta(g)$  のおおよその振る舞いを知ることができる。まずコンダクタンスが十分大きい領域を考えると、系は金属的であると考えてよい。従って、Eq.(5.8)のようになるから、その対数微分を取って関数 $\beta(g)$  は ( $g$  が大きい場合)

$$\beta(g) = d - 2 \quad (5.9)$$

となる。 $g$  が小さい場合は絶縁体に対応する。それは不規則ポテンシャルが十分強く、電子状態は局在していて、系の大きさ  $L$  が電子の波動関数の広がり(局在長)  $\varepsilon$  よりも大きい場合である。波動関数の裾は指数関数的に減衰しており、それが系の両端でも振幅の程度に応じてコンダクタンスは決まるであろう。従って、コンダクタンスは系が大きくなるにつれて減少し、おおよそ

$$g(L) \cong g_0 e^{-\alpha L/\varepsilon} \quad (5.10)$$

と表される。ここで、 $g_0$  は  $L \cong \varepsilon$  におけるコンダクタンス、 $\alpha$  は 1 のオーダーの係数である。従って、関数  $\beta(g)$  はこの領域で( $g$  が小さい場合)

$$\beta(g) = \log\left(\frac{g}{g_0}\right) \quad (5.11)$$

となり、 $g \rightarrow 0$  では負で発散することが分かる。

$\beta(g)$  の金属と絶縁体の両極限における振る舞いが分かったから、その間は滑らかにつながると仮定すれば、 $\beta(g)$  の大体の挙動を全領域で描くことができる(Fig. 5.1)。

Fig. 5.1 から、(1) 1, 2 次元では電子状態は常に局在する。常に、 $\beta(g) < 0$  であるから、 $L = L_0$  における  $g$  の値  $g_0 = g(L_0)$  がどうであろうとも、Eq.(5.11)に従って、 $L$  が増大すると共に  $g$  は減少し、0 に近づく。これは、大きい系では絶縁体になること、すなわち不規則ポテンシャルの強さによらず電子状態は常に局在することを意味する。

(2) 3 次元では金属絶縁体転位が起こる。関数  $\beta(g)$  は  $g$  の境界値  $g_c$  に対して  $g < g_c$  のとき  $\beta(g) < 0$ 、 $g > g_c$  のとき  $\beta(g) > 0$  である。従って初期値  $g_0$  が  $g_0 < g_c$  であれば、1, 2 次元と同様に  $L$  の増加と共に  $g$  も減少し系は絶縁体的になる。不規則ポテンシャルの強さや電子のエネルギーが変化すれば  $g_0$  は変わるが、それが  $g_c$  に対して大きいか小さいかで電子状態の局在が起こるか起こらないかが決まる[4]。

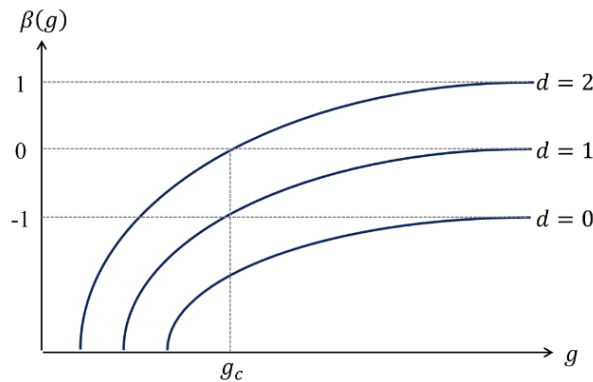


Fig. 5. 1 Brief description of  $\beta(g)$  depending on the dimension of electron  $d$ .

### 5.1.2 Weak localization

今度は 2 次元電子でコンダクタンスが十分に大きく、金属的に振る舞っている領域を考える。2 次元では電子状態は全て局在するから、金属的に見えるのは系の大きさ  $L$  が局在状態の波動関数の広がり  $\varepsilon$  よりも十分小さい場合、つまり  $L \ll \varepsilon$  の場合である。

2 次元電子では、式(1.29)により、 $\beta(g) \cong g \rightarrow \infty = 0$  であるから、 $\beta(g)$  は  $g$  の大きい領域では  $1/g$  で展開できるものとし、展開の第一項のみを残して、

$$\beta(g) \cong -\frac{\alpha}{g} \quad (5.12)$$

と表してよい。ここで  $\alpha$  は 1 のオーダーの正の係数である。式(1.32)を式(1.28)に代入して、初期条件を  $g(L_0) = g_0$  として積分すると

$$g(L) = g_0 - \alpha \log\left(\frac{L}{L_0}\right) \quad (5.13)$$

が導かれる。これから系の大きさが増すと共に、コンダクタンスは対数的に減少することが分かる。このコンダクタンスの現象を系が金属的に振る舞う領域に現れる局在の前駆現象とみなして、弱局在現象(Weak localization: WL)と呼ぶ。

これまでの議論では、不規則ポテンシャル中を運動する 1 個の電子を考えた。実際の物質中では、電子はフォノンや他の電子とも相互作用をしている。電子がこのような相互作用によって散乱されるときには、不純物による散乱とは違って電子のエネルギーが保存されない非弾性散乱が起きる。

このような場合、非弾性散乱が起こる平均時間を  $\tau_\phi$  とすれば電子が静止した不純物中を拡散すると考えて良い時間範囲は  $\tau_\phi$  までとなる。非弾性散乱がおこればエネルギーが変わるため別の局在状態に移り拡散を続けると考えれば理解しやすい。

電子が不純物により散乱されながら進む運動は、一周のランダムウォーク (random walk) である。電子が時間  $t$  の間に進む距離は、拡散係数を  $D$  として

$$D = \frac{1}{2} v_F \tau, \quad L_\phi = \sqrt{D \tau_\phi} \quad (5.14)$$

と定義できる。 $v_F$  はフェルミ速度である。有限系では、電子の局在は系の大きさ  $L_\phi$  で打ち切れる。マクロな系で非弾性散乱が起これば、今まで考えてきた  $L$  の代わりに  $L_\phi$  が局在を打ち切る動きをすると考えられる。従って、Eq.(5.13)は

$$g(L) = g_0 - \alpha \log\left(\frac{L_\phi}{L_0}\right) \quad (5.15)$$

で書き換えられる。

0 K では全ての自由度が最低エネルギー状態にあるので、その間でエネルギーのやり取りは起きえず、 $1/\tau_\phi \cong 0$  と考えられる。従って低温では

$$1 / \tau_{\phi} \propto T^p \quad (p > 0) \quad (5.16)$$

のように振舞うと思われます。 $g$  は伝導度でもあるので

$$\sigma(T) = \sigma_0 + \frac{1}{2} \alpha p \log(T) \quad (5.17)$$

が得られる。温度が下がるとともに、伝導度は対数的に減少する。

それでは、WL の摂動を用いた補正を行ってみよう。電子が不純物によって散乱されると、定まった波数を持つブロッホ状態は $\tau$ 程度の寿命を持つ。それに伴う電子状態の幅 $\hbar/\tau$ があまり大きくなければ、電子系は自由電子的、あるいは金属的に振る舞う。そのための条件は、 $E_F$ を $\hbar/\tau \ll E_F$ である。このことは逆にいえば、金属的な性質への不純物散乱による補正が $(\hbar/\tau)/E_F$ のオーダーで生じることを意味する。すなわち、伝導度は

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m} \left(1 + \alpha \frac{(\hbar/\tau)}{E_F}\right) \quad (5.18)$$

また 2 次元の場合は $n \sim k_F^2$ で近似でき、補正項の大きさは

$$\Delta\sigma = \frac{ne^2\tau}{m} \cdot \frac{(\hbar/\tau)}{E_F} \cong \frac{e^2}{\pi\hbar} \quad (5.19)$$

と見積もれる。電子密度や不純物散乱の強さによらず、ユニバーサルな大きさを持つことが分かる。

伝導度に対する量子補正は、振動数 $\omega$ の電場に対する伝導度の量子補正として

$$\Delta\sigma(\omega) = -\frac{2e^2D}{\pi\hbar} \int_0^{1/L} \frac{qdq}{Dq^2 - i\omega} \quad (5.20)$$

で与えられる。ここで $\omega \rightarrow 0$ が直流伝導度であるが、この時 Eq. (5.20)は負で発散する。この計算は $\Delta\sigma$ を小さな補正項として求めたので、それが $-\infty$ になったのでは意味がない。しかし、この結果は直流伝導度が 0、すなわち電子系は絶縁体になることの徴候であると考えて良い。有限な系では、波数ベクトルが $\frac{2\pi}{L}$ を単位に量子化され、式(1.40)の積分は輪に変わる。積分の下限 0 を $1/L$ に置き換えればよく、 $\omega = 0$ の時の補正は

$$\Delta\sigma = \frac{ne^2\tau}{m} \cdot \frac{(\hbar/\tau)}{E_F} \cong \frac{e^2}{\pi\hbar} \quad (5.21)$$

となる。これはスケーリング理論の結果(1.33)と一致し、係数は $\alpha = 2e^2/\pi\hbar$ となるのである。

有限温度で電子が非弾性散乱を受ける場合は、電子状態に $\hbar/\tau_{\phi}$ 幅が加えられる。その結果を取りいれて計算すると、 $\omega = 0$ の伝導度について式(1.40)を $\hbar/\tau_{\phi}$ に置き換えた表式が得られるので、積分して

$$\Delta\sigma(\omega) = -\frac{2e^2}{\pi\hbar} \log \frac{L}{L_{\phi}} = -\frac{e^2}{\pi\hbar} \log \frac{\tau_{\phi}}{\tau} \quad (5.22)$$

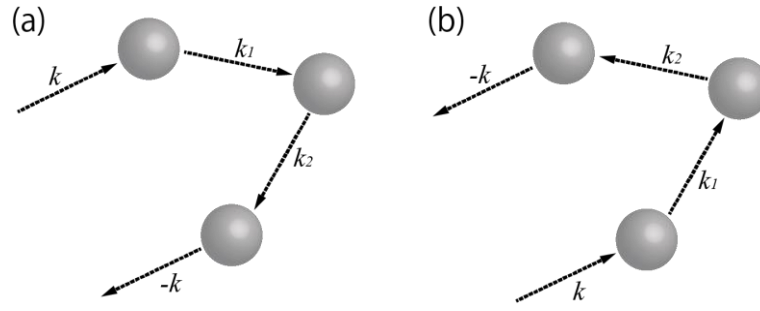


Fig. 5. 2 Time reversal relationship in 3-time scattering process. (a) is the back scattering process of  $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$  and (b) indicates that of  $-\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}$ .

これもスケーリング理論と一致することが明らかである。

ここで、これまで行った伝導度の補正の物理的な意味を考える。不純物ポテンシャルは空間的にみると不規則であるが、時間反転の対称性を有している。波数  $k$  の状態から  $k'$  への散乱を反転させたものは、 $-k$  から  $-k'$  への散乱である。不純物ポテンシャルが時間反転の対称性を持つというのは、この二つの散乱について行列要素が等しいこと、つまりポテンシャル  $V$  が

$$\langle \mathbf{k}' | V | \mathbf{k} \rangle = \langle -\mathbf{k} | V | -\mathbf{k}' \rangle \quad (5.23)$$

の性質を持つことである。このような対称性は散乱の高次過程についても同様に成り立つ。例えば、不純物 1, 2, 3 によって  $\mathbf{k}$  から  $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2$  を経て  $\mathbf{k}'$  に散乱される 3 次過程と、その時間反転  $-\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}_2 \rightarrow -\mathbf{k}_1 \rightarrow \mathbf{k}$  とは行列要素が等しいのである (Fig. 5.2)。

ここで特に、 $\mathbf{k}$  から  $-\mathbf{k}$  への後方散乱に注目する。 $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$  の散乱は、時間を反転させても  $-\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}$  であるが、3 次の過程でいえば、Fig. 5.2 の (a), (b) が互いに時間反転の関係にあることがわかる。時間反転の対称性によって、この二つの過程が位相も含めて等しい行列要素を持つことになる。

高次の過程で生じる散乱波は、散乱する不純物の組と順序が異なれば、一般には位相が変化してしまう。従って Fig. 5.2 のような  $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$  の後方散乱では、(a), (b) の過程が同じ位相を持ち、干渉して強めあう。従ってこの機構では後方散乱が強ければ伝導度が減少するのである (WL)。

つまり Eq. 5.21 と Eq. 5.22 の補正は、以上のことを取り入れている。波数  $\mathbf{k}$  の入射波に対して  $-\mathbf{k}$  の強い反射波が生じれば、その重ね合わせで定常波ができるのである。この効果が波数関数を局在に導く。後方散乱の役割が系の次元が低いほど重要であること、従って局在が低次元系で顕著になることが明らかとなる [4, 5]。

それでは、WL において磁場が存在する場合の振る舞いについて述べる。磁場  $\mathbf{B}$  があるとき、 $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'$  の時間反転は単に  $-\mathbf{k}' \rightarrow \mathbf{k}$  とはならない。式で表すと

$$\langle \mathbf{k}' | V | \mathbf{k} \rangle_{\mathbf{B}} = \langle -\mathbf{k} | V | -\mathbf{k}' \rangle_{-\mathbf{B}} \quad (5.24)$$

として対称性をもつ。従って  $\mathbf{B}$  の向きが決まっていれば、等しくならない。対称性が

成り立たないので、散乱波の干渉は起きず、補正項は消失する。

この効果について 2 次元面位垂直に位置一様な磁場  $\mathbf{B}$  をかけた時を想像してみる。そのベクトルポテンシャルは  $\mathbf{A}(\mathbf{r})$  とする。  $\mathbf{A}(\mathbf{r})$  を任意のスカラー関数  $\chi(\mathbf{r})$  によって

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}) \rightarrow \mathbf{A}'(\mathbf{r}) = \mathbf{A}(\mathbf{r}) + \nabla \chi(\mathbf{r}) \quad (5.25)$$

のようにゲージ変換しても、  $\mathbf{B}$  は変化しない。量子力学では、これと同時に波動関数が

$$\psi(\mathbf{r}) \rightarrow \psi'(\mathbf{r}) = \exp\left[-\frac{ie}{\hbar} \chi(\mathbf{r})\right] \psi(\mathbf{r}) \quad (5.26)$$

と変換される。電子のある領域では  $\mathbf{B}=0$  で、単に  $\mathbf{A}$  のみがある場合は

$$\chi(\mathbf{r}) = - \int_{r_0}^{\mathbf{r}} \mathbf{A}(\mathbf{r}') \cdot d\mathbf{s} \quad (5.27)$$

をとることによりその領域で  $\mathbf{A}$  を消すことができる。

磁場があまり強くない場合、効果として最も重要なのは、篠で示したような電子派の位相変化である。不純物を 1, 2, 3... と回る一つの散乱過程では、その道筋をたどる Eq. 5. 27 の積分が磁場による位相変化を与える。ストークスの定理と  $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$  の関係から、積分は経路を貫く磁束になるが、それは経路の直径を  $R$  として、  $BR^2$  のオーダーである。 Eq. 5. 26 より位相変化は  $eBR^2/\hbar$  となる。これに対し、逆コースをたどる散乱過程では、磁束を逆向きに回るために位相変化も逆向きとなり、結局二つの間には  $eBR^2/\hbar$  の程度の位相差が生じる。この位相差が 1 のオーダーになれば、干渉効果は消えれと見なければならない。その時の長さを磁気長  $L_B$  とすれば、  $eBL_B^2/\hbar \approx 1$  より

$$L_B \cong \sqrt{\frac{\hbar}{eB}} \quad (5.28)$$

となることが分かる。

磁場が弱く  $L_B > L_\phi$  のときは、電子の局在を打ち切るものは非弾性散乱である。しかし、磁場が強くなり  $L_B < L_\phi$  になると、磁場が局在を打ち切ることになる。その時の伝導度の補正は、Eq. 5. 21 も用い、

$$\Delta\sigma(\omega) = -\frac{2e^2}{\pi\hbar} \log \frac{L_B}{l} = -\frac{e^2}{\pi\hbar} \log \frac{\hbar}{eD\tau B} \quad (5.29)$$

となる。磁場の増大とともに、伝導度の対数的な増大、すなわち抵抗の減少がみられる。つまり局在による伝導度の減少が、局在を妨げる磁場の効果によって抑えられ、負の磁気抵抗効果が生じる[4, 5]。



### 5.1.3 Weak antilocalization

これまで扱ってきた時間反転対称性の系における電子の干渉効果では、スピンの位相の寄与を考慮しなかった。つまりスピンの位相が常に保たれる仮定で進めてきたわけである。しかし、スピン軌道相互作用の節で説明したように、スピン軌道相互作用が強い系では電子は有効磁場を感じるためスピンの位相は変化する。この時に、電子の干渉効果がどのような振る舞いをするかについて議論する。

波動関数は軌道部分 $\varphi(x)$ とスピン部分 $\gamma(\alpha)$ のテンソル積で記述することができる。

$$|\psi(x, \alpha)\rangle = |\varphi(x)\rangle \otimes |s(\alpha)\rangle \quad (5.30)$$

特定の後方散乱の原点における確率振幅は

$$(\langle\psi'| + \langle\psi|)(|\psi'\rangle + |\psi\rangle) = |\psi|^2 + |\psi'|^2 + 2\text{Re}[\int \varphi^* \varphi' dx \int s^* s' d\alpha] \quad (5.31)$$

であるから、経路中で散乱されている間にスピン部分 $\gamma$ が変化すれば干渉項もその影響を受けるはずである。

SOI が強い場合、電子スピンは有効磁場を感じて歳差運動する。有効磁場の方向は電子の運動量ベクトルに依存するから、多重散乱によって電子スピンは様々な方向に回転することになる。この時の電子のスピン部分は

$$\int s^* s' d\alpha = \langle s | s' \rangle \quad (5.32)$$

3次元における回転演算子  $\mathbf{R}$  は

$$\mathbf{R} = \begin{pmatrix} \cos \frac{\delta}{2} e^{i(\alpha+\beta)} & i \sin \frac{\delta}{2} e^{-i(\alpha-\beta)} \\ i \sin \frac{\delta}{2} e^{i(\alpha-\beta)} & \cos \frac{\delta}{2} e^{-i(\alpha+\beta)} \end{pmatrix} \quad (5.33)$$

ここで $\alpha, \beta, \delta$  は  $x, y, z$  軸に対応する角度である。

従ってある経路におけるある散乱過程  $C$  後のスピンの位相は

$$|s''\rangle = \mathbf{R}|s\rangle \quad (5.34)$$

またこの過程の逆経路をたどる場合のスピン位相は

$$|s'\rangle = \mathbf{R}^{-1}|s\rangle \quad (5.35)$$

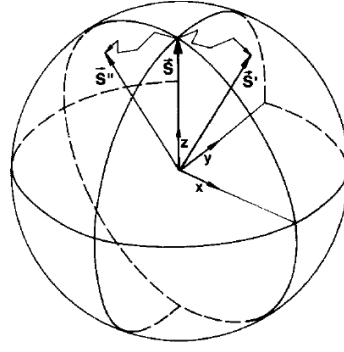


Fig. 5. 3 Shift of phase of spin after scattering process. Graphic taken from [7]

となる(Fig.5.3)。すなわち、逆経路  $C'$  を伝搬してきた電子に  $\mathbf{R}$  を作用させると初期状態に戻り、さらに  $\mathbf{R}$  を作用させることで  $C$  のスピン位相と同様になる。

$$\langle s'' | s' \rangle = \langle s | R^{-2} | s \rangle = \langle s | R^2 | s \rangle \quad (5.36)$$

スピン部分をスピノル形式(2成分形式)で表記して、

$$|s\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \cos \frac{\delta}{2} \\ \sin \frac{\delta}{2} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix} \quad (5.37)$$

簡単のために  $a, b$  とした。Eq. 5. 36 の期待値を計算すると、

$$\mathbf{R}^2 = \begin{pmatrix} \cos^2 \frac{\delta}{2} e^{2i(\alpha+\beta)} - \sin^2 \frac{\delta}{2} & i \sin \frac{\delta}{2} \cos \frac{\delta}{2} (e^{-2i\alpha} + e^{2i\beta}) \\ i \sin \frac{\delta}{2} \cos \frac{\delta}{2} (e^{2i\alpha} + e^{-2i\beta}) & \cos^2 \frac{\delta}{2} e^{2i(\alpha-\beta)} - \sin^2 \frac{\delta}{2} \end{pmatrix} \quad (5.38)$$

であるから、

$$\begin{aligned} (a^* \quad b^*) \mathbf{R}^2 \begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix} &= aa^* \cos^2 \frac{\delta}{2} e^{2i(\alpha+\beta)} - aa^* \sin^2 \frac{\delta}{2} - ab \sin \frac{\delta}{2} \cos \frac{\delta}{2} (e^{-2i\alpha} + e^{2i\beta}) \\ &\quad + ab \sin \frac{\delta}{2} \cos \frac{\delta}{2} (e^{2i\alpha} + e^{-2i\beta}) + bb^* \cos^2 \frac{\delta}{2} e^{2i(\alpha-\beta)} - bb^* \sin^2 \frac{\delta}{2} \\ &= (|a|^2 e^{2i(\alpha+\beta)} + |b|^2 e^{-2i(\alpha-\beta)}) \cos^2 \frac{\delta}{2} - (|a|^2 + |b|^2) \sin^2 \frac{\delta}{2} \\ &\quad + \{a^* b (e^{-2i\alpha} + e^{2i\beta}) + b^* a (e^{2i\alpha} + e^{-2i\beta})\} i \sin \frac{\delta}{2} \cos \frac{\delta}{2} \end{aligned} \quad (5.39)$$

となる。この計算において、



**i. SOI が強い場合**

スピンは経路によって完全にランダム回転すると考えられるから、 $\alpha, \beta, \delta$  に対して等重率で足し合わせると、 $\sin^2$  以外の項は消える。従って、

$$\langle s'' | s' \rangle = -(|a|^2 + |b|^2) \sin^2 \frac{\delta}{2} = -\sin^2 \frac{\delta}{2} \quad (5.40)$$

さらに、 $\delta$  に対して平均を取ると

$$-\sin^2 \frac{\delta}{2} = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} -\sin^2 \frac{\delta}{2} d\delta = -\frac{1}{2} \quad (5.41)$$

この結果はスピン部分が常に弱めあう干渉効果を生むということを示している。ゆえに SOI が強い場合、スピン部分の干渉効果によって波動関数振幅はむしろ減少し、局在が妨げられる。これを弱反局在現象 (Weak antilocalization: WAL) という。

**ii. SOI が弱い場合**

この場合は角度の変化がないことを意味しており、 $\alpha, \beta, \delta$  に 0 を代入してあげると式(5.39)の計算値は 1 となる。つまりスピンは干渉効果に影響を及ぼさない[6-8]。

ここまでの WL と WAL に関する説明をまとめるとそれぞれ Fig. 5.4 (a), (b) となる。取り上げているパラメータをもう一度説明すると、

$L_B$ : 磁気長(magnetic length)、磁場によって電子の局在が保たれる距離

$L_\phi$ : 位相緩和長(phase relaxation length)、弾性散乱によって電子の局在起きる距離

$L_{SO}$ : スピン緩和長(spin relaxation length)、SOI によってスピンの状態が保たれる距離。

$L_{SO}$  より長い領域ではスピン部分の干渉効果によって局在が妨げられる。

SOI が弱い材料では、WL が起こり、Fig. 5.4 (a) のようになる。磁場が印加されていない領域では、 $L_\phi$  に依存し強め合う干渉効果(positive interference)が生じ、MR が増加する。磁場を印加していくと(①→③)、 $L_B$  が短くなることにつれ電子の局在が打ち切られるため、干渉効果が抑えられる。次に、SOI が強い材料で起こる WAL を考える Fig. 5.4 (b)。この場合、スピンによる干渉効果を取り組む必要があり、 $L_{SO}$  より長い範囲では局在が打ち消しあう干渉効果(negative interference)が得られる。従って磁場がない状態では  $L_{SO}$  の寄与による MR の減少が観測され、WAL となる。磁場を印加していくと、 $L_B$  の減少により局在が妨げられる領域が少なくなるため MR の増加が得られるが(②)、 $L_{SO}$  より  $L_B$  が短くなると WL の高磁場での振る舞いと類似した結果となる。

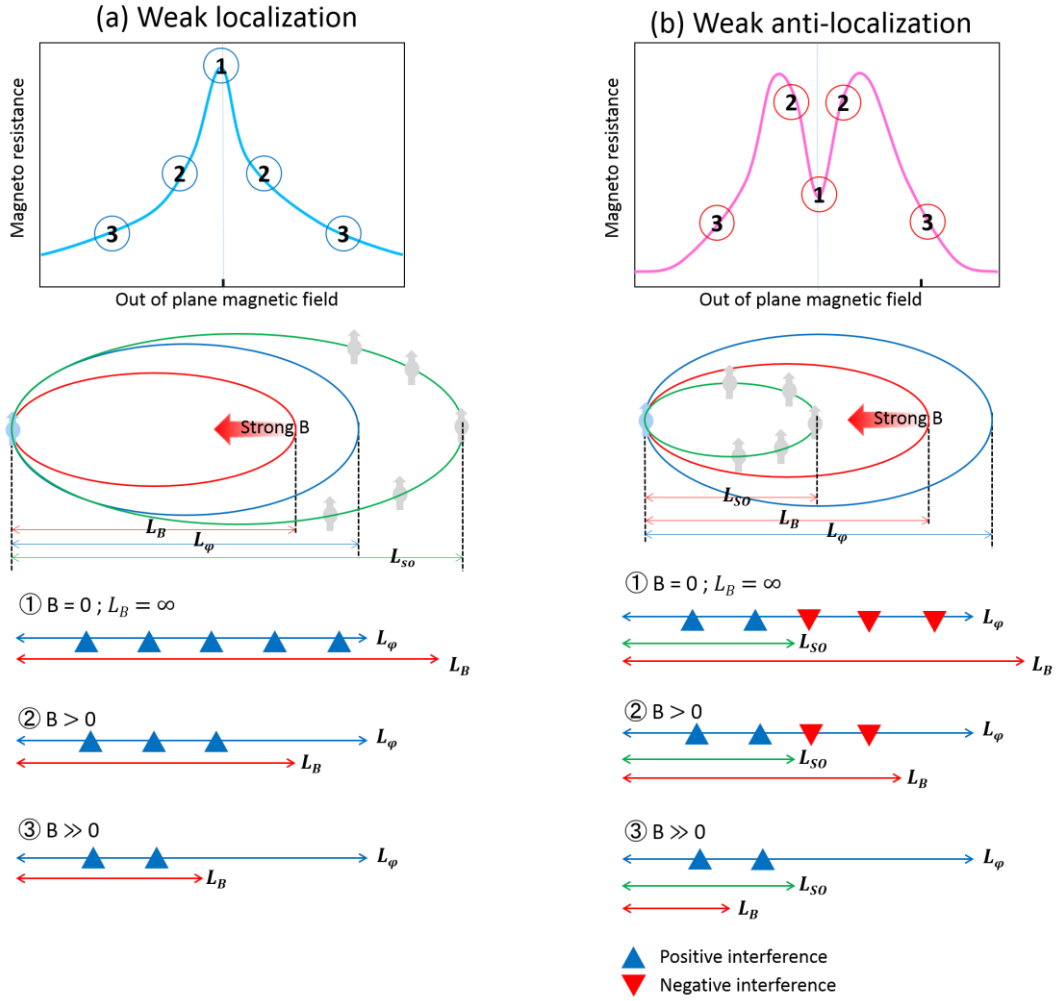


Fig. 5. 4 Illustrations for regime of (a)WL and (b)WAL. Since WL occurs in weak SOI material, it only shows positive interference in all region resulting in increase of MR. Increase of magnetic field(①→③) induces decrease of magnetic length  $L_B$ , therefore the region for elastic scattering also decrease so that total MR is in high magnetic field. On the other hand, in the case of WAL with strong SOI material, spin relaxation length  $L_{so}$  should be taken into account. Since outside of  $L_{so}$  results in negative interference in elastic scattering regime thus decrease of .MR. When a magnetic field is increasing, the contribution of negative interference decreases due to increase of  $L_B$ , therefore increase of MR is observed.

### 5.1.4 Evaluation of spin relaxation from WAL measurement

- Hikami – Larkin – Nagaoka model (HLN)

WALにおけるMRを説明する理論はこれまでにいくつか発表されている。その中でも、先駆ける理論であったのは1980年に氷上ら(Hikami, Larkin, Nagaoka)が発表した理論であり、彼らはスピンの緩和機構としてEYを取り込み、スピン緩和を定量的に評価する理論を提唱した[9]。WL、WALから生じるMRを2次元電子の電気伝導率の変化 $\Delta\sigma$ として表すと次のようになる。

$$\Delta\sigma(B) = -\frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \left[ \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{\tau a}\right) - \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{\tau_1 a}\right) + \frac{1}{2}\psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{\tau_2 a}\right) - \frac{1}{2}\psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{\tau_3 a}\right) \right] \quad (5.42)$$

ここで、

$$\frac{1}{\tau_1} = \frac{1}{\tau_{so}^z} + \frac{2}{\tau_{so}^x} + \frac{2}{\tau_B^x} + \frac{1}{\tau_\varphi} - iw \quad (5.43)$$

$$\frac{1}{\tau_2} = \frac{2}{\tau_B^z} + \frac{4}{\tau_B^x} + \frac{1}{\tau_\varphi} - iw \quad (5.44)$$

$$\frac{1}{\tau_3} = \frac{2}{\tau_B^z} + \frac{4}{\tau_{so}^x} + \frac{1}{\tau_\varphi} - iw \quad (5.45)$$

$$a = \frac{4DeB}{\hbar} \quad (5.46)$$

となり、 $\tau_\varphi, \tau_B, \tau_{so}$  はそれぞれ位相緩和時間、磁気長の緩和時間、スピン緩和時間であり、 $L_i = \sqrt{D\tau_i^2}$  ( $i = \varphi, B, so$ ) の関係を用いることによって  $L_\varphi$  及び  $L_{so}$  が求められる[9]。また  $\psi$  はディガンマ関数(digamma function)である。

- Iordanskii – Lyanda-Geller-Pikus model (ILP)

上記したHLNだけであると、EYしか取り組まれてないことから実験結果を完全に説明するにはいならず、理論の修正が必要となった。1994年にIordanskiiら(Iordanskii, Lyanda-Geller, Pikus)はHLNにDPを加えることによってスピン緩和を評価するモデルを提案した[10]。具体的に、ゼロ磁場におけるスピン分裂をスピン依存のベクトルポテンシャルとして導入し、WALを説明することに成功した。本理論はILP (Iordanskii, Lyanda-Geller, Pikus) 理論と呼ばれている。ILP理論からはゼロ磁場スピン分裂が存在する系にいて、WL及びWALによる $\Delta\sigma$ への補正が、次式のように導かれている。

$$\begin{aligned} \Delta \sigma(B) = & -\frac{e^2}{4\pi^2\hbar} \left\{ \frac{1}{a_0} + \frac{2a_0 + 1 + b_{SO}}{A_1[a_0 + b_{SO}] - 2b_{SO}} \right. \\ & - \sum_{n=1}^{\infty} \left[ \frac{3}{n} - \frac{3a_n^2 + 2a_nb_{SO} - 1 - 2b_{SO}(2n+1)}{[a_n + b_{SO}]a_{n-1}a_{n+1} - 2b_{SO}[(2n+1)a_n + 1]} \right] \\ & \left. + 2\ln(b_{el})\psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{b_{\varphi}}\right) \right\} \end{aligned} \quad (5.47)$$

ここで、

$$a_n = n + \frac{1}{2} + b_{\varphi} + b_{SO} \quad (5.48)$$

$$\psi(1+x) = \sum_{n=1}^{\infty} \left( \frac{x}{n(n+x)} \right) \quad (5.49)$$

$$b_{el} = \frac{H_{el}}{B}, b_{\varphi} = \frac{H_{\varphi}}{B}, b_{SO} = \frac{H_{SO}}{B} \quad (5.50)$$

ここで  $B$  は試料(電子の進行面)に垂直方向(面直)となる。また Eq.(5.47)から得られる  $H_{el}, H_{\varphi}, H_{SO}$  はそれぞれの物理的意味を持つ磁場の値となり、

$$H_{el} = \frac{\hbar}{4De\tau_{el}} = \frac{\hbar}{4eL_{el}} \quad (5.51)$$

$$H_{\varphi} = \frac{\hbar}{4De\tau_{\varphi}} = \frac{\hbar}{4eL_{\varphi}} \quad (5.52)$$

$$H_{SO} = \frac{\hbar}{8D\hbar e} \Delta_0^2 \tau_{el} = \frac{\hbar}{8eL_{SO}^2} \quad (5.53)$$

上記のような式で  $L_{\varphi}$  及び  $L_{SO}$  が求められる。 $\tau_{el}$  は弾性散乱時間(elastic scattering time)であり、電子が弾性散乱によって原点に戻ってくる最小の時間を表す( $\tau_{el} \ll \tau_{\varphi}$ )。またスピン分裂エネルギーの半値を周波数  $\Omega_1$  として、 $\Delta_0 = 2\Omega_1$  と定義する。

## 5.2 Harmonic voltage measurement

第2章で述べたように、HM/FM構造においてHM層のSOIからなるスピンの偏極が界面に蓄積されると、トルクとしてFMの磁化に影響を及ぼす。この現象をSOTと呼び、SOTにはSOIが生じる原因や作用する方向によって $B_{AD}$ と $B_{FL}$ が存在することを学んだ。本節では、 $B_{AD}$ と $B_{FL}$ を定量的に評価する測定方法に関して説明する。近年行われた先行研究によって、外部磁場を印加シながら4端子の異常ホール測定を行い、その1次と2次のハーモニック成分と調べることでSOTを評価できる方法が確立された[11-13]。これはハーモニック測定法(Harmonic measurement)と呼ばれ、外部磁場の大きさや印加方法によって低磁場におけるハーモニック測定法(Harmonic measurement at low magnetic field)[11,12]と高磁場におけるハーモニック測定法(Harmonic measurement at high magnetic field)[13]がある。それぞれの方法から求められる $B_{AD}$ と $B_{FL}$ のプロファイルは異なるが両方の測定方法ともSOTから得られるハーモニック成分に注目しているため、条件を近似することによって同様な値を導くことができる。従って両方の測定でクロスチェックを行うことから得られたSOTの信頼性を確保することができ、本研究で行った結果については第7章で詳しく説明する。ここではHayashiらによって提案された低磁場におけるハーモニック測定法とPietroらによって確立された高磁場におけるハーモニック測定法について紹介する。それぞれの方法は[11,12]及び[13,15]に基づき、記述されたことを記しておく。なお、本論文で扱うFMは全て垂直磁気異方性(perpendicular magneto anisotropy:PMA)を有するため、本章ではPMAを有するFMだけに集中する<sup>1</sup>。また本節では磁化及び磁場の情報を効率的に表現するために用いた座標系をFig. 5.5のように球面座標系(spherical coordinate system)を用いた。

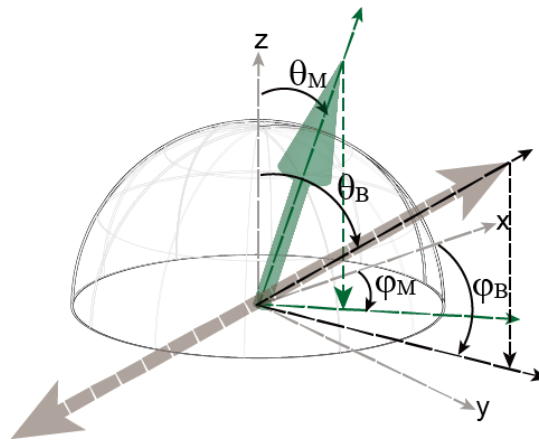


Fig. 5.5 Coordinate system in this chapter. Magnetization (green arrow) and external magnetic field(gray dashed arrow) is described with  $(\theta_M, \varphi_M)$  and  $(\theta_B, \varphi_B)$ .

<sup>1</sup>面内に磁気異方性を持つHM/FM構造でもSOTを評価できることが報告されている[12,14]。

### 5.2.1 Harmonic measurement at low magnetic field

Fig.5.5 から、磁化  $\mathbf{M}$  と外部磁場  $\mathbf{B}$  を以下のように定義される。

$$\mathbf{M} = Ms(\sin\theta_M \cos\varphi_M, \sin\theta_M \sin\varphi_M, \cos\theta_M) \quad (5.54)$$

$$\mathbf{B} = B(\sin\theta_B \cos\varphi_B, \sin\theta_B \sin\varphi_B, \cos\theta_B) \quad (5.55)$$

ここで  $\mathbf{M}$  が SOT によって振動されるとする。それで生じる角度の変化を  $\theta_M (= \theta_0 + \Delta\theta)$  及び  $\varphi_M (= \varphi_0 + \Delta\varphi)$  で表すと、 $\Delta\theta$  と  $\Delta\varphi$  はそれぞれ

$$\Delta\theta = \frac{\partial\theta}{\partial B_X} \Delta B_X + \frac{\partial\theta}{\partial B_Y} \Delta B_Y + \frac{\partial\theta}{\partial B_Z} \Delta B_Z \quad (5.56)$$

$$\Delta\varphi = \frac{\partial\varphi}{\partial B_X} \Delta B_X + \frac{\partial\varphi}{\partial B_Y} \Delta B_Y + \frac{\partial\varphi}{\partial B_Z} \Delta B_Z \quad (5.57)$$

となる。ここで  $(\partial\theta_i/\partial B_i)$  は SOT からなる有効磁場  $\Delta B_i$  によって得られる角度の変化である<sup>2</sup>( $i = X, Y, Z$ )。Eq.(5.56) と (5.57) に異方性エネルギーおよび外部磁場を考慮し、エネルギーの平衡状態における  $\Delta\theta$  と  $\Delta\varphi$  として書き直すと以下の式となる。

$$\Delta\theta = \frac{\cos\theta_0(\Delta B_X \cos\varphi_B + \Delta B_Y \sin\varphi_B) - \sin\theta_0 \Delta B_Z}{(B_K - B_A \sin^2\varphi_B) \cos 2\theta_0 + B \cos(\theta_B - \theta_0)} \quad (5.58)$$

$$\Delta\varphi = \frac{-\Delta B_X \sin\varphi_B + \Delta B_Y \cos\varphi_B}{-B_A \sin\theta_0 \cos 2\varphi_B + B \sin\theta_B} \quad (5.59)$$

ここで  $B_K$  は垂直磁気異方性による磁場、 $B_A$  は形状磁気異方性などによる磁気異方性の面内成分である。 $B_A$  が無視できるほど小さく ( $B_A \ll B \sin\theta_B$ )、PMA を有する  $\mathbf{M}$  である ( $\theta_0 \approx 0^\circ$ ) とすると Eq.(5.60) と (5.61) のように書き直すことができる。

$$\Delta\theta = \frac{\Delta B_X \cos\varphi_B + \Delta B_Y \sin\varphi_B}{B_K \pm B \cos\theta_B} \quad (5.60)$$

$$\Delta\varphi = \frac{-\Delta B_X \sin\varphi_B + \Delta B_Y \cos\varphi_B}{B \sin\theta_B} \quad (5.61)$$

Eq.(5.60) における  $\pm$  は  $\theta_0 \approx 0^\circ$  の場合の正の面直磁化 ( $M_Z +$ ) と  $\theta_0 \approx 180^\circ$  の場合の負の面直磁化 ( $M_Z -$ ) に対応する。以上の導出から、SOT による有効磁場が存在するときの角度の変化  $\Delta\theta$  と  $\Delta\varphi$  を求めることができる。

これからは Fig.5.6 のように外部磁場を印加しながら交流電流によるホール電圧を測定すると、磁化成分による異常ホール効果(anomalous Hall effect: AHE) と面内ホール効果(planar Hall effect) の寄与が含まれた形で検出される[16-18]。従ってホール電圧  $V_{XY}$  は

$$V_{XY} = V_A \cos\theta + V_P \sin^2\theta \sin(2\varphi) \quad (5.62)$$

となる<sup>3</sup>。ここで  $V_A$  は AHE から来る電圧、 $V_P$  は PHE から得られる電圧を意味する。

<sup>2</sup>  $\Delta B_i$  は SOT だけではなく電流によって生じる Oersted field の寄与もあるが、ここでは Oersted field の寄与は無視できるとする。

<sup>3</sup> ただし、ここでは HM 層から来る Ordinary Hall effect は非常に小さく、無視できるとする。

次に、 $\theta_M (= \theta_0 + \Delta\theta)$  及び  $\varphi_M (= \varphi_0 + \Delta\varphi)$  を代入して表すと、以下のように展開することができる( $\Delta\theta, \Delta\varphi \ll 1$ )。

$$V_{XY} \approx V_A (\cos\theta_0 - \Delta\theta \sin\theta_0) + V_P (\sin^2\theta_0 + \Delta\theta \sin 2\theta_0)(\sin 2\varphi_0 + 2\Delta\varphi \cos\varphi_0) \quad (5.63)$$

$\sin ft$  の周期関数を持つ交流電流( $I = I \sin ft$ )が印加されたとき、周波数  $f$  が十分小さければ SOT は交流電流と同期される。従って Eq.(5.58)と Eq.(5.59)から得られる  $\Delta B_i$  は  $\Delta B_i \sin ft$  として働き、故に  $\Delta\theta$  と  $\Delta\varphi$  も  $\Delta\theta \sin ft$  と  $\Delta\varphi \sin ft$  の形で書き替えられる。以上の内容を Eq.(5.63)に代入すると

$$\begin{aligned} V_{XY} &= V_0 + V_f \sin ft + V_{2f} \sin 2ft \\ V_0 &= (B_\theta + B_\varphi) \\ V_f &= A \\ V_{2f} &= -(B_\theta + B_\varphi) \end{aligned} \quad (5.64)$$

のような結果が得られ、 $V_f$  が 1 次のハーモニック成分、 $V_{2f}$  が 2 次のハーモニック成分となる。ここで、

$$\begin{aligned} A &= V_A \cos\theta_0 + V_P \sin^2\theta_0 \sin 2\varphi_0 \\ B_\theta &= (-V_A \sin\theta_0 + V_P \sin 2\theta_0 \sin 2\varphi_0) \Delta\theta \\ B_\varphi &= (2V_P \sin^2\theta_0 \cos 2\varphi_0) \Delta\theta \end{aligned} \quad (5.65)$$

となる。PMA を有する系において、面内方向( $\theta_B = 90^\circ$ )に磁場を印加したとする。またその磁場  $B$  は十分小さく、それによる  $\theta_0$  の変動がほぼないとすると( $\theta_0 \approx \theta_0'$ )

$$\theta_0' = \frac{B \sin\theta_B}{B_K \pm B \cos\theta_B}, \quad \varphi_0 = \varphi_B \quad (5.66)$$

であり Eq.(5.64)に代入すると、

$$\begin{aligned} V_f &\approx V_A \cos\theta_0 = V_A (1 - \sin^2\theta_0) = V_A (1 - \theta_0'^2) \\ &= V_A \left(1 - \frac{1}{2} \left(\frac{B \sin\theta_B}{B_K \pm B \cos\theta_B}\right)^2\right) \\ V_{2f} &\approx -\{(-V_A \sin\theta_0 + V_P \sin 2\theta_0 \sin 2\varphi_0) \Delta\theta + (2V_P \sin^2\theta_0 \cos 2\varphi_0) \Delta\theta\} \\ &= \left\{ \left(-V_A \times \frac{B \sin\theta_B}{B_K \pm B \cos\theta_B} \times \frac{\Delta B_X \cos\varphi_B + \Delta B_Y \sin\varphi_B}{B_K \pm B \cos\theta_B}\right) \right. \\ &\quad \left. + \left(2V_P \times \frac{B \sin\theta_B}{B_K \pm B \cos\theta_B} \times \sin 2\varphi_0 \times \frac{-\Delta B_X \sin\varphi_B + \Delta B_Y \cos\varphi_B}{B \sin\theta_B}\right) \right\} \\ &= \frac{B \sin\theta_B}{(B_K \pm B \cos\theta_B)^2} \times \{-V_A \times (\Delta B_X \cos\varphi_B + \Delta B_Y \sin\varphi_B) \\ &\quad + 2V_P (-\Delta B_X \sin\varphi_B + \Delta B_Y \cos\varphi_B)\} \end{aligned} \quad (5.68)$$

となる。 $\theta_B \approx 90^\circ$  の条件で近似すると  $V_f$  は

$$V_f \approx V_A \left(1 - \frac{1}{2} \left(\frac{B}{B_K}\right)^2\right) \quad (5.69)$$

従って、 $\varphi_B$  によらず



$$\frac{\partial^2 V_f}{\partial x^2} \approx V_A \left( \frac{1}{B_K} \right)^2 \quad (5.70)$$

となることがわかる。

次に、 $V_{2f}$ は  $x$  方向に磁場を印加した場合( $\varphi_B = 0^\circ$ )と  $y$  方向に磁場を印加した場合( $\varphi_B = 90^\circ$ )に分けて考えると

$$V_{2f}(\varphi_B = 0^\circ) \approx -\frac{B}{B_K^2} \left( -V_A \times (\Delta B_X) + 2V_P (\Delta B_Y) \right) \quad (5.71)$$

$$V_{2f}(\varphi_B = 90^\circ) \approx -\frac{B}{B_K^2} \left( -V_A \times (\Delta B_Y) + 2V_P (\Delta B_X) \right) \quad (5.72)$$

となり、

$$\frac{\partial V_{2f}}{\partial B}(\varphi_B = 0^\circ) \approx \frac{-1}{B_K^2} \left( -V_A \times (\Delta B_X) + 2V_P (\Delta B_Y) \right) \quad (5.73)$$

$$\frac{\partial V_{2f}}{\partial B}(\varphi_B = 90^\circ) \approx \frac{-1}{B_K^2} \left( -V_A \times (\Delta B_Y) + 2V_P (\Delta B_X) \right) \quad (5.74)$$

上式ような結果が得られる。つまり、 $V_f$ は外部磁場を印加した時の磁化の平衡状態を表し、その 2 階微分は磁化が磁場に対して変化する度合いを表す。従って  $B_K$  が強いほど磁化の変化は少なく、 $(\partial^2 V_f / \partial x^2)$  は小さい。次に  $V_{2f}$  は SOT から生じる有効磁場に対する振動を表しており、 $x$  軸に磁場を印加した時( $\varphi_B = 0^\circ$ )は  $x$  方向の有効磁場  $\Delta B_X$  が、 $y$  軸に磁場を印加した時( $\varphi_B = 90^\circ$ )は  $y$  方向の有効磁場  $\Delta B_Y$  が AHE に比例し現れてくる。従って  $(\partial V_{2f} / \partial B)$  から  $(\partial^2 V_f / \partial x^2)$  を割ってあげることで有効磁場の成分だけを取り出すことができる。

$$B_X' = \frac{\frac{\partial V_{2f}}{\partial B}(\varphi_B = 0^\circ)}{\frac{\partial^2 V_f}{\partial x^2}} = \frac{\left( -V_A \times (\Delta B_X) + 2V_P (\Delta B_Y) \right)}{V_A} \quad (5.75)$$

$$B_Y' = \frac{\frac{\partial V_{2f}}{\partial B}(\varphi_B = 90^\circ)}{\frac{\partial^2 V_f}{\partial x^2}} = \frac{\left( -V_A \times (\Delta B_Y) + 2V_P (\Delta B_X) \right)}{V_A} \quad (5.76)$$

しかし Eq(5.75) と Eq(5.76) から求められた有効磁場には PHE による直交方向の有効磁場の影響が存在することから、磁場方向に合わせた有効磁場を求めるためには PHE の影響を補正してあげる必要がある<sup>4</sup>。PHE と AHE の比を  $\xi (= V_P / V_A)$  とし、 $\Delta B_X$  と  $\Delta B_Y$  を式で表すと、

$$\Delta B_X = -\frac{(B_X' + 2\xi B_Y')}{1 - 4\xi^2} \quad (5.77)$$

<sup>4</sup>  $\xi$  の導出方法については 7.1 節で述べる。

$$\Delta B_Y = -\frac{(B_Y' + 2\xi B_X')}{1 - 4\xi^2} \quad (5.78)$$

となる。ここでSOTによる有効磁場 $\Delta B_X$ と $\Delta B_Y$ がどのように第2章で学んだ二つのSOTである $B_{AD}$ と $B_{FL}$ と関係づけられるかについて考える。第2章において、 $B_{AD}$ の場合 $(\mathbf{M} \times \mathbf{y} \times \mathbf{M})$ の方向として、 $B_{FL}$ の場合 $(\mathbf{y} \times \mathbf{M})$ として作用することから、LLG方程式に代入し考えると

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times (B_{ext} + B_{FL}(\mathbf{y} \times \mathbf{M}) + B_{AD}(\mathbf{M} \times \mathbf{y} \times \mathbf{M})) + \alpha \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \quad (5.79)$$

上式から $\partial \mathbf{M} / \partial t$ は $B_{FL}$ ではy方向に作用し、 $B_{AD}$ ではx方向に作用することがわかる。従ってEq.(5.77)とEq.(5.78)で求めた $\Delta B_X$ と $\Delta B_Y$ はそれぞれ $B_{AD}$ と $B_{FL}$ に対応する。

以上の原理によって、HM/FMにおけるSOTを定量的に評価することができる。磁場を面内方向に印加し、 $\theta_M \approx 0^\circ$ となる磁場範囲で $V_f$ と $V_{2f}$ を測定することで、 $(\partial V_{2f} / \partial B) / (\partial^2 V_f / \partial x^2)$ の値からSOTを求めることが可能となる。また磁場を印加する方向やPHEを考慮してあげることで $B_{AD}$ と $B_{FL}$ を算出できる。 $\theta_M \approx 0^\circ$ となる磁場範囲を印加することから、低磁場で測定を行うことになり、本測定は低磁場におけるハーモニク測定と呼ばれ、 $\theta_M \approx 0^\circ$ におけるSOTを評価する有効的な手法である。

### 5.2.2 Harmonic measurement at high magnetic field

第2章において、 $B_{AD}$ 及び $B_{FL}$ を $(\mathbf{M} \times \mathbf{y} \times \mathbf{M})$ と $(\mathbf{y} \times \mathbf{M})$ として導いたが、高次項まで展開すると以下のように表現できると知られている[19]。

$$B_{AD} = -\cos\theta_M \sin\varphi_M (B_{AD,0} + B_{AD,2} \sin^2\theta_M + B_{AD,4} \sin^4\theta_M) e_\theta - \cos\varphi_M B_{AD,0} e_\varphi \quad (5.80)$$

$$B_{FL} = \cos\varphi_M (B_{FL,0} + B_{FL,2} \sin^2\theta_M + B_{FL,4} \sin^4\theta_M) e_\theta - \cos\theta_M \sin\varphi_M B_{FL,0} e_\varphi \quad (5.81)$$

ここで $e_\theta, e_\varphi$ は $\mathbf{M} (= M_s(\sin\theta_M \cos\varphi_M, \sin\theta_M \sin\varphi_M, \cos\theta_M))$ における $\theta, \varphi$ 方向のユニットベクトルである。つまりある $\mathbf{B}$ における $\mathbf{M}$ の状態によって $B_{AD}$ と $B_{FL}$ が変化することを表している。また5.2.1.では $B_{AD}$ 及び $B_{FL}$ はそれぞれ $\Delta B_X$ と $\Delta B_Y$ として対応していると考えたが、 $\theta_M \approx 0^\circ$ の近似が成り立たない条件では $e_\theta, e_\varphi$ 両方向において作用することを意味する。

5.2.1で調べたように、HM/FMにおけるホール電圧 $V_{XY}$ は電流 $I$ に大きく依存し、 $(\theta_0, \varphi_0)$ で $\mathbf{M}$ が平衡状態を持つ場合、

$$V_{XY} = V_{XY}(\theta_0, \varphi_0) + I \left. \frac{dV_{XY}}{dI} \right|_{\theta_0, \varphi_0} \quad (5.82)$$

と記述される。当然 $\theta, \varphi$ も $I$ によって変化し、

$$\frac{dV_{XY}}{dI} = R_f + R_{2f}(I) \quad (5.83)$$

$$R_f = R_A \cos\theta_0 + R_P \sin^2\theta_0 \sin(2\varphi_0) \quad (5.84)$$

$$R_{2f} = I(R_A \cos\theta_0 - 2R_P \cos\theta_0 \sin(2\varphi_0)) \frac{d\cos\theta_M}{dI} \Big|_{\theta_0} + IR_P \sin^2\theta_0 \frac{d\sin 2\varphi_M}{dI} \Big|_{\varphi_0} \quad (5.85)$$

ここで $R_f$ ,  $R_{2f}$ ,  $R_A$ ,  $R_P$  はそれぞれ $V_f$ ,  $V_{2f}$ ,  $V_A$ ,  $V_P$  の抵抗値に対応する。5.2.1 における $V_f$ ,  $V_{2f}$  と同様に、 $R_f$  は $\mathbf{M}$ の平衡状態で決定されるが、 $R_{2f}$ は電流によって変わることから、SOTの依存性を導くことができると予想できる。全体のSOTを $B_{Total} = (B_{AD} + B_{FL})$ であるとする<sup>5</sup>、 $R_{2f}$ における第一項と第二項はそれぞれ

$$\frac{d\cos\theta_M}{dI} = \frac{d\cos\theta_M}{dB_{Total}} \cdot \frac{dB_{Total}}{dI} = \frac{d\cos\theta_M}{dB_{Total,\theta}} b_\theta \quad (5.86)$$

$$\frac{d\sin 2\varphi_M}{dI} = \frac{d\sin 2\varphi_M}{dB_{Total}} \cdot \frac{dB_{Total}}{dI} = \frac{d\cos\theta_M}{dB_{Total,\varphi}} b_\varphi \quad (5.87)$$

上式において $B_{Total,\theta}$ と $B_{Total,\varphi}$ はそれぞれ $B_{Total}$ の $\theta$ ,  $\varphi$ 方向成分を表しており、 $b_\theta$ 及び $b_\varphi$ は $B_{Total,\theta}$ と $B_{Total,\varphi}$ を $I$ で割った値である。 $B_{Total}$ の半径方向成分(radial component)は $\mathbf{M}$ に影響を及ぼさないため考慮しなくて良い。 $b_\theta$ 及び $b_\varphi$ を定量的に評価するためには、Eq.(5.86)と Eq.(5.87)にある $d\cos\theta_M/dI$ と $d\sin 2\varphi_M/dI$ を理解する必要がある。外部磁場 $B_{ext}$ の場合 $\theta_B$ ,  $\varphi_B$ が $\mathbf{M}$ によらず常に一定であることから、 $B_{Total}$ と書き換えて表すと

$$\frac{d\cos\theta_M}{dI} = \frac{d\cos\theta_M}{dB_{ext}} \frac{1}{\sin(\theta_B - \theta_M)} b_\theta \quad (5.88)$$

$$\frac{d\sin 2\varphi_M}{dI} = \frac{d\cos\theta_M}{dB_{Total,\varphi}} b_\varphi = 2\cos 2\varphi_M \frac{d\varphi_M}{dB_{Total,\varphi}} \approx \frac{2\cos 2\varphi_M}{B_{ext} \sin \theta_B} b_\varphi \quad (5.89)$$

Eq.(5.89)における近似は一軸磁気異方性が存在する場合だけに限って成り立つ。上記で得られた式を $R_{2f}$ に代入してあげると

$$R_{2f} = I(R_A \cos\theta_0 - 2R_P \cos\theta_0 \sin(2\varphi_0)) \frac{d\cos\theta_M}{dB_{ext}} \Big|_{\theta_0} \frac{1}{\sin(\theta_B - \theta_M)} b_\theta + IR_P \sin^2\theta_0 \frac{2\cos 2\varphi_M}{B_{ext} \sin \theta_B} b_\varphi \quad (5.90)$$

となる。 $R_f$  から $\theta_M$ の情報が直接的に得られるため、 $d\cos\theta_M/dB_{ext}$ は $R_f$ の磁場に対する一階微分から求めることができる。

$$R_A \frac{d\cos\theta_M}{dB_{ext}} = \frac{dR_f}{dB_{ext}} \quad (5.91)$$

それからPMAを有する $\mathbf{M}$ では $\varphi_M = \varphi_B$ であることを考えると、Eq.(5.90)、Eq.(5.91)及び $B_{ext}$ が分かれば $B_{Total,\theta}(=Ib_\theta)$ と $B_{Total,\varphi}(=Ib_\varphi)$ が得られることになる。

これからは上述した高磁場におけるハーモニク測定法において $B_{Total,\theta}$ 及び $B_{Total,\varphi}$ が $B_{AD}$ 及び $B_{FL}$ との対応関係に関して考える。Eq.(5.80)、Eq.(5.81)のように、 $B_{AD}$ 及び $B_{FL}$ とも $\theta$ ,  $\varphi$ 方向の成分を有しており、 $\varphi_B = 0^\circ$ の場合で考えると

<sup>5</sup> 5.2.1 と同様に、Oersted field の寄与は無視できるとする。

Table 5. 1 Characteristic of  $B_{Total}$  as a function of  $\varphi_B$ 

	$\varphi_B = 0^\circ$	$\varphi_B = 90^\circ$
$B_{Total,\theta}$	$-(B_{AD,0} + B_{AD,2}\sin^2\theta_M + \dots)$	$-\cos\theta_M(B_{FL,0} + B_{FL,2}\sin^2\theta_M + \dots)$
$B_{Total,\varphi}$	$-B_{FL,0}$	$-\cos\theta_M B_{AD,0}$

$$B_{AD}(\varphi_B = 0^\circ) = (B_{AD,0} + B_{AD,2}\sin^2\theta_M + \dots)e_\theta \quad (5.92)$$

$$B_{FL}(\varphi_B = 0^\circ) = -B_{FL,0}e_\varphi \quad (5.93)$$

次に  $\varphi_B = 90^\circ$  の場合は

$$B_{AD}(\varphi_B = 90^\circ) = -\cos\theta_M B_{AD,0}e_\varphi \quad (5.94)$$

$$B_{FL}(\varphi_B = 90^\circ) = -\cos\theta_M(B_{FL,0} + B_{FL,2}\sin^2\theta_M + \dots)e_\theta \quad (5.95)$$

となることが容易にわかる。表としてまとめると Table. 5.1 のようになる。

従って  $\varphi_B$  によって  $B_{AD}$  及び  $B_{FL}$  が作用する方向が変わることになり、 $\varphi_B = 0^\circ$  及び  $\varphi_B = 90^\circ$  における  $R_{2f}$  を測定することで  $B_{AD}$  と  $B_{FL}$  を求めることができる。 $\theta_B$  については高磁場においても単磁区状態を保てるように面内方向から  $\theta$  方向に少しずれた角度に設定してあげる ( $\theta_B = 80 - 84^\circ$ ) とより広い範囲における  $\theta_M$  で評価することができる。

前節で説明した低磁場におけるハーモニック測定では  $\theta_M \approx 0^\circ$  における SOT を評価することができたが、高磁場におけるハーモニック測定では  $0^\circ < \theta_M < 60^\circ$  のような広い幅の  $\theta_M$  依存性を評価することができる。従って本測定から  $\theta_M$  や  $\varphi_M$  による SOT のプロファイルを得ることができ、その特徴から SOT のエンジニアリングが可能となる。また求められた SOT を  $\theta_M \sim 0^\circ$  の領域で近似することにより  $\theta_M \approx 0^\circ$  における SOT を求められるため、低磁場におけるハーモニック測定から得られた SOT と比較することができる。従って、本研究では低磁場及び高磁場によるハーモニック測定を行い、SOT の  $\theta_M$  依存性を評価するとともに、各方法の評価された SOT をクロスチェックすることで求められた SOT の信頼性を高めた。

### 5.3 Conclusion

本章では本論文で行ったスピン緩和及びスピン軌道トルクの評価に用いた実験の原理や測定方法について説明を行った。

5.1 ではスピン緩和の評価に関わる量子干渉効果に関して述べた。2次元における伝導電子の場合、ポテンシャルの形によって局在現象が生じる。この局在現象は弾性散乱の度合いや外部磁場の印加によって局在の度合いを評価することができる。SOI が弱い場合は強め合う干渉効果が生じ、MR が増加する局在現象が観測される。それに対し、SOI が強い場合は、スピンによる干渉効果を考慮する必要があり、局在が打ち消しあう干渉効果が得られる。従って外部磁場を印加しながら MR を測定し、量子干渉効果を評価することでスピン緩和のパラメータを導き出すことができる。またそのフィッティングにはスピン緩和が生じるメカニズムによって HLN と ILP があることを紹介した。HLN の場合は散乱によるスピン緩和に基づく EY を取り組んだフィッティングであり、ILP は内因性 SOI を考慮した DP を表す理論式となる。第 6 章では本原理に基づき WAL を測定し、スピン緩和の評価を行うことから Pt の結晶性によるスピン緩和メカニズムを調べた。

5.2 では HM/FM 構造で生じる SOT の評価をする測定方法であるハーモニック測定について説明した。交流電流によるホール効果測定すると、 $\mathbf{M}$  の平衡状態が 1 次のハーモニック成分として検出され、電流に比例した SOT が  $\mathbf{M}$  に及ぼす影響は 2 次のハーモニック成分として観測される。従って両方のハーモニック成分をみることで  $B_{AD}$  と  $B_{FL}$  を評価することが可能となる。また磁場の印加方向や大きさによって 2 つのハーモニック測定法があることを紹介した。低磁場におけるハーモニック測定法では 1 次及び 2 次のハーモニック成分を磁場に対する微分として SOT を求めることができた。ここでは磁場が低いことから  $\theta_M \sim 0^\circ$  の領域における  $B_{AD}$  と  $B_{FL}$  が得られる。次に高磁場におけるハーモニック測定法では  $B_{AD}$  と  $B_{FL}$  が持つ  $\theta, \varphi$  方向の依存性を考慮し、より広い範囲における  $B_{AD}$  と  $B_{FL}$  を求めることができた。従って両方の測定法を比較することによってより正確な SOT を評価することができる。本実験方法を用い、第 7 章の Pt 結晶性がことなる Co/Pt バイレイヤー構造におけるスピン軌道トルクの評価を行った。

## Reference

- [1] P. W. Anderson, Phys. Rev. 109, 1492 (1958).
- [2] N. F. Mott, Rev. Mod. Phys. 50, 203 (1978).
- [3] E. Abrahams, P. W. Anderson, D. C. Licciardello, and T. V. Ramakrishnan, Phys. Rev. Lett. 42, 673 (1979).
- [4] 二次元電子と磁場、川路紳治、朝倉書店 (2007).
- [5] 長岡洋介、日本物理学会誌、40, 7 (1985).
- [6] G. Bergmann, Phys. Rep., 107, 1 (1984).
- [7] G. Bergmann, Solid State Comm., 42, 815 (1982).
- [8] 国橋要司、Ph. D. thesis, Tohoku university (2012).
- [9] S.Hikami, A.Larkin, and Y.Nagaoka, Prog.Theor. Phys 63, 2 (1980).
- [10] S. V. Iordanskii, Y. B. Lyanda-Geller, and G. E. Pikus, JETP Lett. 60, 206 (1994).
- [11] J. Kim, J. Sinha, M. Hayashi, M. Yamanouchi, S. Fukami, T. Suzuki, S. Mitani and H. Ohno, Nat. Mater. **12**, 240 (2013).
- [12] M. Hayashi, J. Kim, M. Yamanouchi, and H. Ohno., Phys. Rev. B, **89**, 144425d (2014).
- [13] K. Garello, I. M. Miron, C. O. Avci, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel, S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin and P. Gambardella., Nat. Nano., **8**, 587 (2013).
- [14] C. O. Avci, K. Garello, M. Gabureac, A. Ghosh, A. Fuhrer, S. F. Alvarado, and P. Gambardella, Phys. Rev. B, **90**, 224427 (2014).
- [15] Can Ounr Avci, Ph.D thesis, ETH ZURICH (2015).
- [16] D. A. Thompson, *et al.*, IEEE Trans. Magn. **11**, 1039 (1975).
- [17] T. R. McGuire and R. I. Potter, IEEE Trans. Magn. **11**, 1039 (1975).
- [18] H. X. Tang, R. K. Kawakami, D. D. Awschalom, and M. L. Roukes, Phys. Rev. Lett. **90**, 107201 (2003).
- [19] Supplemental material S1 of [13].



## 6. Spin relaxation mechanism depending on Pt crystal structure and thickness

スピントロニクスデバイスの実現のために、SOI を中心とした様々な研究が試みられている[1]。特に金属に存在する SOI の場合、近年活発な研究が行われた。代表的に、HM/FM で由来する SOT を利用した磁化反転[2,3]や SOT による磁壁移動の実験[4,5]は金属 SOI を用いたメモリデバイスの実現可能性を示す重要な研究である。また HM に存在する強い SOI を利用したスピンゼーベック効果(spin Seebeck effect)[6,7]や SHE はスピン流の生成に著しい発展をもたらすことができ、ロジックデバイスとしての可能性を表す。以上のように HM に存在する SOI はスピントロニクスデバイスの実現を達成するための必修不可欠なものである。

しかし、現在まで報告されている金属の SOI は、測定方法及び試料構造などにより大きな違いを示している。例えば、同じ Pt であっても $\theta_{SHE}$ は 0.012-0.37、また $L_{so}$ は 1.5-11nm のように一桁以上異なる広い幅の値が推定されている[3, 10-18]。その原因としては、測定方法及び試料構造によって生じる SOI が異なるためであると考えられる。金属内で起きる SOI は主に EY に起因すると考えられているが、2.2 で述べたように散乱頻度によって SOI は変調されると予想される。また近年の研究では HM/FM(Pt/Co)及び HM/HM(Ag/Pt)の界面で Rashba SOI が存在すると報告されており[2,19]、この際には EY だけではなく DP を加えた上で SOI を理解する必要がある。

本章では結晶性による Pt のスピン緩和を調べることで、金属内に生じる SOI のメカニズムを定量的に調べた。多結晶の Pt では従来のメカニズムのように EY が支配的になると予想されるが、単結晶にすることにより散乱を抑えることが期待される。この場合 DP の影響が相対的に強くなることから、多結晶とは異なるスピン緩和の挙動を示すと期待される。更に、結晶依存性に加え膜厚依存性に関するスピン緩和の実験を行った。膜厚が厚い領域ではバルク Pt による EY が支配的になるが、膜厚が薄くなり、と界面の影響が強くなり、界面で生じる Rashba SOI が現れると期待される。

以上のモチベーションを基に、4.1 で確立した試料構造及び 5.1 の実験方法を用い Pt のスピン緩和の実験を行った。従って多結晶の試料としては GaAs 基板上成長した Pt(AlO/Pt/GaAs)を、単結晶の試料としては MgO 基板上に成長した試料を用いる。各試料は 2 nm から 15 nm の間の Pt 膜厚を持って成膜された。また量子干渉効果を可能な限り増大するため 1.6 K の極低温で WAL の測定を行った。6.1 では結晶性による電気輸送測定の結果を、6.2 では WAL から得られるスピン緩和の情報を中心的に説明し、それから得られるスピン緩和メカニズムを最後にまとめる。

なお本章の実験結果において、記述の簡便性のため特に追記がない限り多結晶 Pt(AlO/Pt/GaAs:以下 Pt/GaAs)は青色で、単結晶 Pt(AlO/Pt/MgO:以下 Pt/MgO)は赤色で記す。



## 6.1 Transport property

薄膜における電気輸送特性はバルクの時とは同様であるとは限らず、準 2 次元系での振る舞いを示すと考えられる。特に膜厚が下がるほど界面の影響が大きくなると推測できる。また単結晶成長によって規則正し構造を持つほど結晶粒界および欠陥による散乱が抑制されると予想できる。以上の情報はスピン緩和の計算に影響を及ぼすので、実際測定を行い、議論する必要がある。

### 6.1.1 Resistivity and Sheet resistance

一般的に金属の抵抗  $R$  は抵抗率(resistivity)  $\rho$  を用いて次のように定義される。

$$R = \frac{l}{wt} \rho \quad (6.1)$$

ここで  $l, w, t$  はそれぞれ試料の長さ、幅、膜厚である。抵抗の厚さを含めて考えると

$$R = \frac{l}{wt} \rho = \frac{l}{w} R_s \quad (6.2)$$

となり、シート抵抗(sheet resistance)  $R_s$  が定義できる。

Pt/GaAs は多結晶ではあるが周期的なポテンシャルを有していると考えることができ、Pt/GaAs 及び Pt/MgO とともに動的な乱れと静的な乱れが挙げられる。動的な乱れは格子振動である。熱振動によりイオンが平行位置からずれ、周期性が乱されて伝導電子は散乱を受ける。格子振動との相互作用は電子－格子相互作用(electron – phonon interaction) と呼ばれている。格子振動による比抵抗を  $\rho_L$  と書くことにする。 $\rho_L$  は温度の低下とともに減少し絶対零度において熱振動が消えるとゼロになる。一方、静的な乱れには実際の金属に多かれ少なかれ含まれる不純物や欠陥がある。これを不純物による抵抗と称し、 $\rho_i$  と書く。 $\rho_i$  では温度変化しない。従って  $\rho_L, \rho_i$  の寄与を考えると

$$\rho = \rho_L + \rho_i \quad (6.3)$$

と表せる(マティーンセンの法則 ; Matthiessen's rule)[20]。

本測定では極低温(1.6K)における電気抵抗を測定したため、 $\rho_L$  の寄与はないとしてみなすことができる。Fig.6.1 に膜厚による抵抗率およびシート抵抗の結果を示す。Fig.6.1(a), (b)の両方の結果において、Pt/MgO が Pt/GaAs より遥かに低い  $\rho$  及び  $R_s$  を示していることが明らかである。これは結晶性から由来する違いとなり、一般的な格子構造を考えると、結晶成長中の転位、表面欠陥、結晶粒界などが存在する。よって格子配置において乱れが生じ、抵抗増加の原因となる[21]。一方、エピタキシャル成長された金属の場合は結晶粒界及び転位などがほぼ存在しないと考えることができ、多結晶と比べ抵抗値が減少すると容易に想像できる。実際測定された  $\rho$  は Pt/MgO において一桁ほど小さく、散乱が極めて抑制されていることが明らかになった。

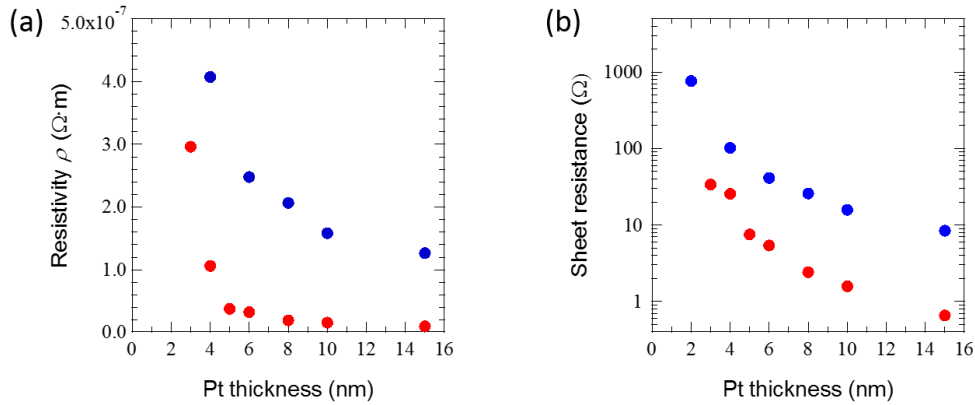


Fig.6. 1 Resistivity and sheet resistance depending on Pt thickness. Blue dots and red dots indicate Pt/GaAs and Pt/MgO, respectively.

次に各試料における膜厚による変化に注目する。両方の試料で、膜厚が薄くなるほど急激に抵抗が増加する傾向を表している。不純物濃度は膜厚によらず一定であり、4.1で行った結晶性の評価から考えると結晶性は膜厚によって急激に変化ないと考えられる。従って結晶性に関係界面散乱の影響が大きくなり抵抗の増加をもたらしたと推測される。

### 6.1.2 Carrier density

キャリア密度(carrier density)はホール効果(Hall effect)を用いることで求められる。試料の  $z$  方向の長さを  $t$ 、 $y$  方向の幅を  $w$  とすると電流  $I_x = J_x wt$  と  $y$  方向のホール電圧  $V_H = E_y w$  の間には

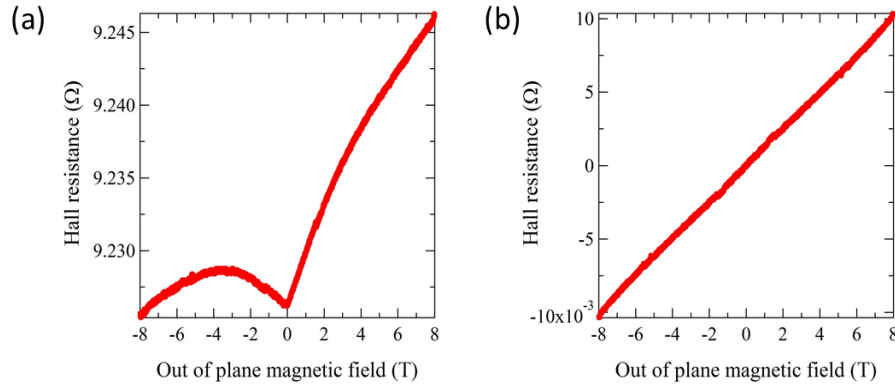
$$V_H = R_H I_x B_z / t \quad (6.4)$$

の関係があり、 $B_z$  は面直磁場である。 $V_H, I_x, B_z, t$  の測定値を用いてホール抵抗  $R_H$  を求めることができる。

$$R_H = -\frac{1}{ne} \quad (6.5)$$

上式からキャリア密度が計算できる[22]。ここで  $e$  は電荷量、 $n$  はキャリア密度である。

ただし、実際測定を行うと  $R_H$  の所に縦方向の抵抗成分が同時に測定される。図 4.2 はその一例である。従って、真のホール抵抗を取り出すための補正作業が必要となる。ホール効果は電子及び正孔がローレンツ力を受けることで生じる現象なので、磁場のベクトルに比例する。従って  $R_H$  は磁場に対して奇関数(odd function)となる。しかし縦抵抗である量子干渉効果による磁気抵抗は前節で説明したように磁気長として働くので、その大きさだけが作用する。ゆえに磁場に対してプロットすると偶関数(even



function)のような

Fig.6. 2 An example of deriving bare Hall resistance in Pt(4nm)/MgO. (a) Raw Hall resistance (b) Bare Hall resistance after subtracting even component in raw data.

振る舞いを示すはずである。以上のことから、奇関数の成分を $f(B)$ 、偶関数の成分を $g(B)$ とすると我々が測定した抵抗 $R_0$ は

$$R_0(B) = f(B) + g(B) \quad (6.6)$$

y 軸対称させると

$$R_0'(B) = -f(B) + g(B) \quad (6.7)$$

$$f(B) = \frac{R_0(B) - R_0'(B)}{2} \quad (6.8)$$

上のような補正過程から真のホール成分が得られる。その一つの例を Fig 6.2 に示す。

以上の方法によって  $n$  を算出することができ、その結果を Fig.6.3 にまとめた。バルク状態の Pt の  $n$  は文献によって異なるが[23-25]、文献[25]の結果から計算していると  $n = 2.20 \times 10^{29}(m^{-3})$  となり、Fig.6.3(a)の実験結果としては膜厚が薄くなることに連れて  $n$  は増加する結果が得られる。膜厚が薄くなると Pt の中心として界面のキャップレイヤー AlO と基板が近づくため Pt の界面における空乏層の割合が増え、 $n$  としては下がると予想していた。しかし実験で得られた値は逆の傾向を表している。その原因としては、薄膜における Pt の格子定数の変化が挙げられる。前節の XRD の結果で、薄膜にすることで Pt の格子定数が小さくなることが明らかになった。つまり Pt の 1 原子当たりの体積  $V$  としては小さくなることを意味している。Murnaghan の式から考えると

$$E(V) = \frac{B_0 V}{B'_0(B'_0 - 1)} \left[ B'_0 \left( 1 - \frac{V_0}{V} \right) + \left( \frac{V_0}{V} \right)^{B'_0} - 1 \right] + E(V_0) \quad (6.9)$$

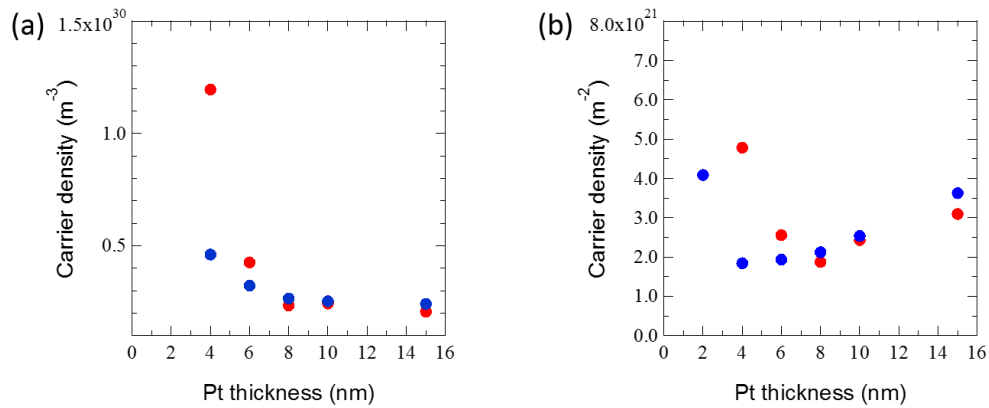


Fig.6. 3 Carrier density  $n$  as a function of Pt thickness (a)  $n$  in 3D. (b)  $n$  in 2D which means sheet carrier density. This can be obtained by dividing  $n$  in 3D by Pt thickness. Blue dots and red dots indicate Pt/GaAs and Pt/MgO, respectively.

従って 1 個の Pt 原子が受けるエネルギーが変化していることを意味する。上式において  $B_0$  及び  $B'_0$  は定数である。Pt における体積によるエネルギーの変化は Fig.6.4 のようになる[5]。Fig.6.3(a)における体積はバルクの格子定数を  $a$  としたときの  $a^3/4$  を 1 として表している。なので薄膜で  $a$  が小さくなると、その時の体積は 1 より減少する。ゆえに薄膜での Pt 1 原子が受けるエネルギーは増加すると予想される。このエネルギーの変化が状態密度の変化を及ぼし、 $n$  の上昇をもたらしたと考えられる。また Fig.6.3(b)のように  $n$  を膜厚で割ってあげることでシート当たりの  $n$  として評価してみると、バルクの両方の試料においてバルクの  $n$  と比較的同様な値が得られることがわかる。従って薄膜における  $n$  の急激な増加は結晶性よりは次元性によって起因したと考えられる。これからの物性パラメータの方かにおいて用いた  $n$  は基本的に実験値を使用し、超薄膜領域(4nm 以下)での  $n$  は理論値を適用した。

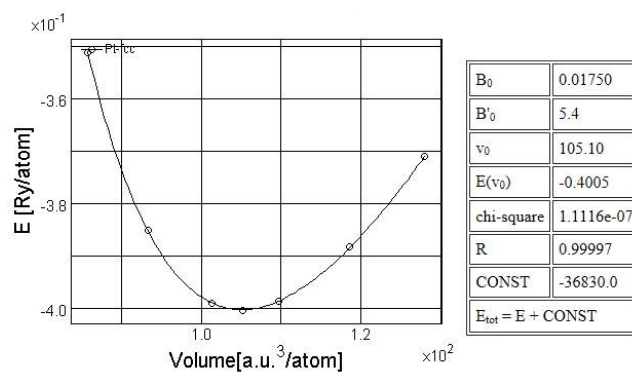


Fig.6. 4 Energy per volume in Pt [25]

### 6.1.3 Mobility and mean free path

これまでの結果で得られた $\rho$ 及び $n$ を用いると、移動度(mobility)  $\mu$ と平均自由行程(mean free path)  $L_e$ を簡単に計算できる(Eq.(6.10), Eq.(6.11))。

$$\mu = \frac{e\tau}{m^*} = \frac{ne^2\tau}{m^*} \times \frac{1}{ne} = \frac{1}{\rho ne} \quad (6.10)$$

$$L_e = v_F\tau = \frac{\hbar k_F}{m^*} \times \frac{\mu m^*}{e} = \frac{\hbar k_F \mu}{e} \quad (6.11)$$

ここで $m^*$ は有効質量(effective mass)、 $\tau$ はモメンタム散乱時間(momentum scattering time)、 $v_F$ はフェルミ速度(Fermi velocity)、 $k_F$ はフェルミ波数(Fermi wave length)となる。

Fig.6.5 に測定から得られた膜厚による  $\mu$ 及び $L_e$ を示す。Eq(6.10)及び Eq(6.11)から考えると $\rho$ に大きく依存するので、Pt/MgOの方がPt/GaAsより十分大きい $\mu$ 及び $L_e$ を持つと容易に考えられる。得られた結果は予想通りとなり、特に膜厚が強い領域では10倍以上の違いを示している。以上のことから、単結晶にすることで散乱が抑えられることが明らかとなる。

次に、膜厚を徐々に下げていくと、両方の試料において $\mu$ と $L_e$ は急激に減少することが見られる。金属の $\mu$ が数 $10 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、 $L_e$ が数 $10 \text{ nm}$ であることを想定すると界面に近づくほど $\mu$ 及び $L_e$ は十分小さいことが分かる。さらに両値は徐々に減少して行く。 $L_e$ の場合を注目してみると、 $L_e$ より膜厚が厚いということはバルク(3次元)の条件と同じなので散乱確率が一定であれば $L_e$ は変化しないはずである。しかし膜厚が狭くなるほど $L_e$ も同時に現象するという結果から考えてみると、結晶性に関係せず界面散乱の影響を強く受けていると考えられる。逆に考えると、極薄膜では不純物散乱よりは界面散乱の方が支配的であるといえる。

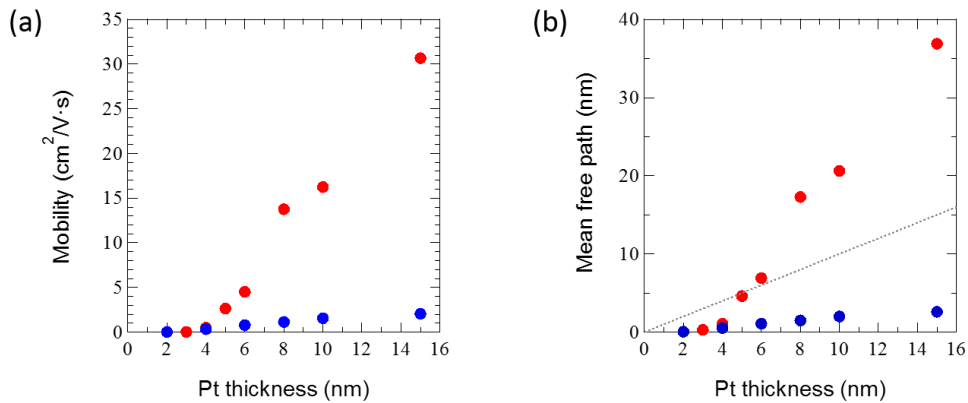


Fig.6. 5 Pt thickness dependence of (a) mobility and (b) mean free path. In (b), the dotted line indicates Pt thickness to show guide line of scattering dimension. Blue dots and red dots indicate Pt/GaAs and Pt/MgO, respectively.

### 6.1.4 Momentum scattering time and diffusion constant

ここではスピン緩和メカニズムの評価において必要となるモメンタム散乱時間 (momentum scattering time)  $\tau$  と拡散係数(diffusion coefficient)  $D$  の評価を行う。

前節における $\mu$ の算出において、式を変換すると $\tau$ が容易に求められる。 $\tau$ は第2章で述べたように、スピン緩和時間 $\tau_{so}$ との関係からスピン緩和メカニズムを調べられる重要なパラメータとなるため、結晶性及び膜厚による違いを記しておく。またこれからは $\tau_{so}$ と区別をつけるためにモメンタム散乱時間は $\tau_p$ として表す。

次に、Eq.(6.12)に述べるアインシュタイン式(Einstein relation)を用いると  $D$  が簡単に求められる。

$$D = \frac{1}{2} v_F^2 \tau_p = \frac{1}{2} \left( \frac{\hbar k_F}{m^*} \right)^2 \tau_p = \frac{1}{2} \left( \frac{\hbar k_F}{m^*} \right)^2 \frac{m^* \mu}{e} = E_F \frac{\mu}{e} = \frac{\mu n}{e N} = \frac{1}{\rho e^2 N} \quad (6.12)$$

$L_i = \sqrt{D \tau_i}$  ( $i = \varphi, B, so$ ) の関係から長さのパラメータを時間のパラメータとして容易に変換することができる。

$\tau_p$  と  $D$  の計算結果を Fig. 6.6 に表しておく。全体的な振る舞いは 6.1.3 で述べた結果と大きな違いは示さず、単結晶において多結晶と比べ大きい $\tau_p$ と $D$ が得られた。しかし、膜厚が薄くなるほど両方の膜において急激な減少が見られ、界面における散乱は考える必要がある。

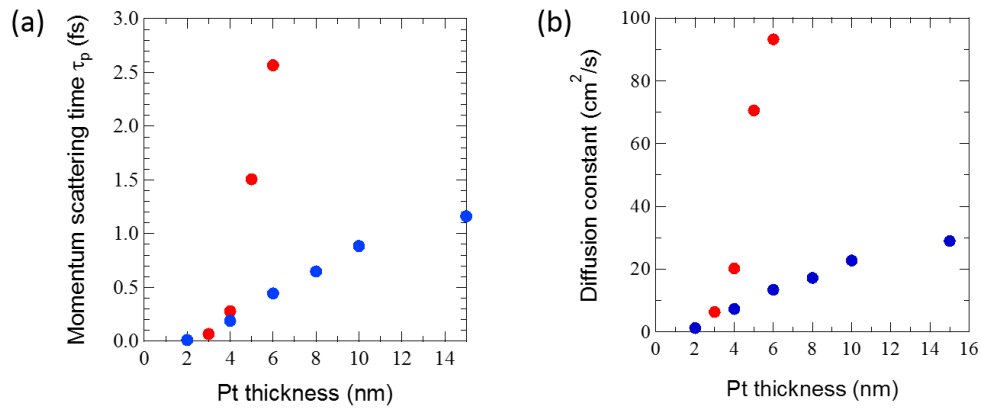


Fig.6. 6 Pt thickness dependence of (a) momentum scattering time and (b) diffusion constant. Blue dots and red dots indicate Pt/GaAs and Pt/MgO, respectively.

### 6.1.5 Interface scattering probability

これまでの電気輸送測定の結果から、単結晶にすることで散乱を抑制できること及び結晶性に関係せず界面散乱の影響を強く受けることが明らかになった。従ってスピン緩和メカニズムを調べるためには、まず界面で生じる散乱を定量的に評価する必要がある。Fig. 6.6 (a)で求めた $\tau_p$ を逆数にするすることで、散乱時間を散乱頻度として表すことができる。その結果は Fig. 6.7 (a)となり、ここで得られたパラメータをモメンタム散乱頻度(momentum scattering rate)  $\Gamma_p$ とてい定義する( $\Gamma_p = 1/\tau_p$ )。

以前の結果と同様に、界面に近づくことによって $\Gamma_p$ は急激に増加していく。ここで起きる散乱はバルク散乱(膜厚が厚い領域)に加えて界面散乱(膜厚が薄い領域)が働いていること考えることができる。式として表すと

$$\Gamma_p = \Gamma_{p,interface} + \Gamma_{p,bulk} \quad (6.13)$$

ここでPtの膜厚が15nm以上ではバルクでの $\rho$ とほぼ同様な値を示すことから $\Gamma_{p,15nm} = \Gamma_{p,bulk}$ として定義すると、界面における散乱頻度(interface scattering probability,  $C_{inf}$ )は下式のように導入される。

$$C_{inf} = \frac{\Gamma_{p,interface}}{\Gamma_p} = \frac{\Gamma_p - \Gamma_{p,bulk}}{\Gamma_p} \quad (6.14)$$

以上の関係から得られる $C_{inf}$ は Fig. 6.7 (b)のような結果となり、膜厚が薄い領域では界面散乱に大きく支配されることが明らかである。また単結晶においても2次元の散乱が生じる領域—量子干渉効果が観測できる領域、ここでは6nm以下—からは界面散乱を取り組む必要がある。

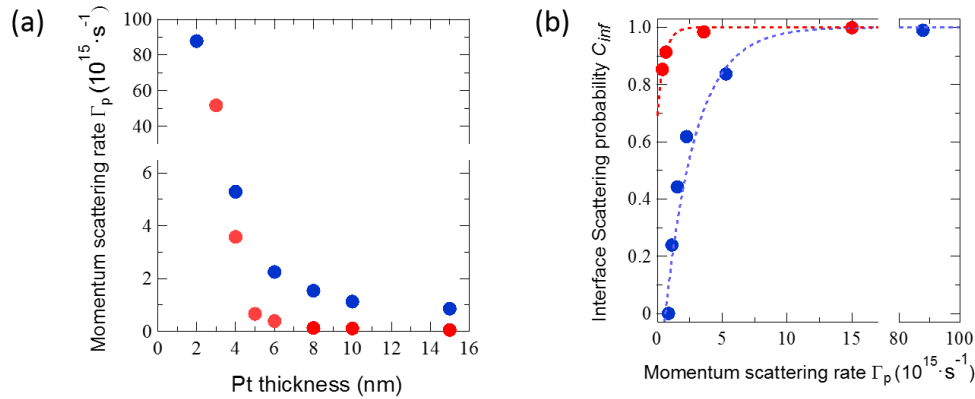


Fig.6. 7 (a)  $\Gamma_p$  as a function of Pt thickness. It shows that  $\Gamma_p$  increases with decreasing Pt thickness. The scale of the y axis is logarithmically plotted. (b)  $\Gamma_p$  dependence of interface scattering probability. Blue dots and red dots indicate Pt/GaAs and Pt/MgO, respectively.



## 6.2 Quantum interference effect

5.1 章で学んだように、SOIが強い材料ではSOIによる局在を妨げる現象が生じる。外部磁場による抵抗変化の測定を理論モデルに当てはめることでSOIの評価が可能となる。ここでは量子干渉効果の測定によって得られたWALの結果を示し、スピン緩和に関するパラメータの評価を行う。

### 6.2.1 Magneto resistance

Fig. 6.1 のように、膜厚によって $\rho$ が異なるため磁場によるMRを比較するためには規格化を行う必要がある。本研究ではゼロ磁場の抵抗を $R_0$ 、ある磁場における抵抗の増減 $\Delta R = R(B) - R_0$ とし、 $\Delta R / R_0$ を用いて膜厚に対するMRを調べた(Fig. 6.8)。まずPt/GaAsの試料から見ると、Ptは強いSOIを持っていると知られているように[3-18]、すべての膜厚においてWALが観測されていることがわかる(Fig. 6.8(a))。

しかし、Pt/MgOにおける $\Delta R / R_0$ を見てみると、その変化が非常に激しいことが容易にみられる(Fig. 6.8(b))。Pt/GaAs系の磁気抵抗と比較すると、一桁以上の違いを示しており、特に厚い膜厚の領域ではおおよそ100倍以上の抵抗変化が得られた。このような大きいMRはパラボリック(parabolic)形として $B^2$ に比例する挙動を示しており、量子干渉効果よりは古典力学によるMRであると考えられる。またFig. 6.8(b)に現れているように古典力学によるMRの寄与は膜厚が下がるとともに減少していることから、

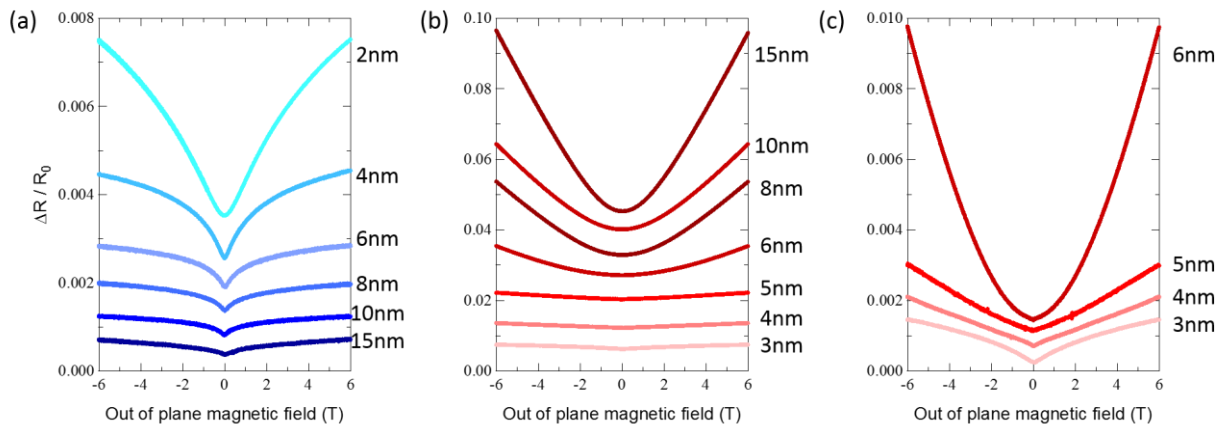


Fig.6. 8 Normalized magnetoresistance results for (a) polycrystallinePt/GaAs and (b) single-crystalline Pt/MgO depending on different Pt thickness. (c) indicates the region less than Pt thickness of 6nm where WAL appearing in Pt/MgO. The gradation from dark color to light color of each result corresponds to change of Pt thickness from thick film to thin film.

単結晶構造による高い $\mu$ から起因していると予想できる。更に、膜厚が厚い領域では古典力学による MR に比べ WAL のシグナルが小さすぎるために殆ど見えないが、薄い領域に行くと低磁場付近で WAL が観測されることが分かった(Fig. 6.8(c))。従って真の WAL を評価するためには、古典力学による MR を評価し、排除する必要がある。

5.1 章では量子干渉効果による MR しか扱わなかったが、古典力学による磁気抵抗も存在する。電子に外から作用する電場と磁場が存在するとき電子が受けるローレンツ力(Lorentz force)は

$$\mathbf{F} = e\mathbf{E} + e\mathbf{v} \times \mathbf{B} \quad (6.15)$$

となる。静磁場だけに集中すると

$$m \frac{d\mathbf{v}}{dt} = e\mathbf{v} \times \mathbf{B} \quad (6.16)$$

上式は平面内に垂直方向に磁場が作用すると電子は円運動をすることを表している。従って磁場が強いほどローレンツ力が大きくなり、電子の電場による軌道を曲げるため抵抗は増加する。これをローレンツ力による磁気抵抗(magneto resistance due to Lorentz force) と呼び、金属においては低磁場では磁場の 2 乗に比例し( $R \propto B^2$ )、高磁場では比例関係( $R \propto B$ )を示す[26, 27]。

ゆえに量子干渉効果を正確に評価するためには、ローレンツ力による MR を引いてあげる必要がある。高磁場の領域ではローレンツ力による MR しか働かないので、高磁場における磁気抵抗をローレンツ力による MR とみなし、全体の磁場の領域に対応させる。それから元の MR との引き算をしてあげると真の WAL が得られる。

測定で得られた Pt / MgO 系に注目すると、全膜厚に当たってローレンツ力による磁気抵抗が現れている(Fig. 6.8(b))。上記の方法を用いて WAL を求めてみると、膜厚が厚い領域(8 nm 以上)では量子干渉効果が得られなかったが、薄い領域(6 nm 以下)では低磁場付近において WAL が見られた(Fig. 6.8(c))。膜厚が厚い領域では量子干渉効果が存在しないというよりは、装置の分解能及び測定温度の関係で測定できなかったと考えられる。Fig. 6.9 に Pt / MgO (6nm) 以下の膜厚 における WAL の導出を示す。また 6.2.2 から議論するスピン緩和の評価には Pt / MgO の場合 WAL が明確に評価できた 6nm 以下の膜厚だけを扱うことにする。

Pt / GaAs 系において同様な測定を行ったが、Pt / MgO 系に限ってローレンツ力による MR が顕著に観測された原因としては結晶性による電子輸送特性の差が挙げられる。低磁場におけるローレンツ力による磁気抵抗の変化は

$$\Delta\rho \approx \rho(\mu B)^2 \quad (6.17)$$

として表現できる[22]。つまり同じ磁場では $\mu$  が大きいほど抵抗の変化が激しい。Fig.6.5 に示したように、単結晶の場合は多結晶と比べ $\mu$  が非常に高く、ローレンツ力による MR が支配的に観測されたと考えられる。また Pt / MgO 系において膜厚が薄いほどローレンツ力による MR が小さくなることも同様な観点から説明できる。

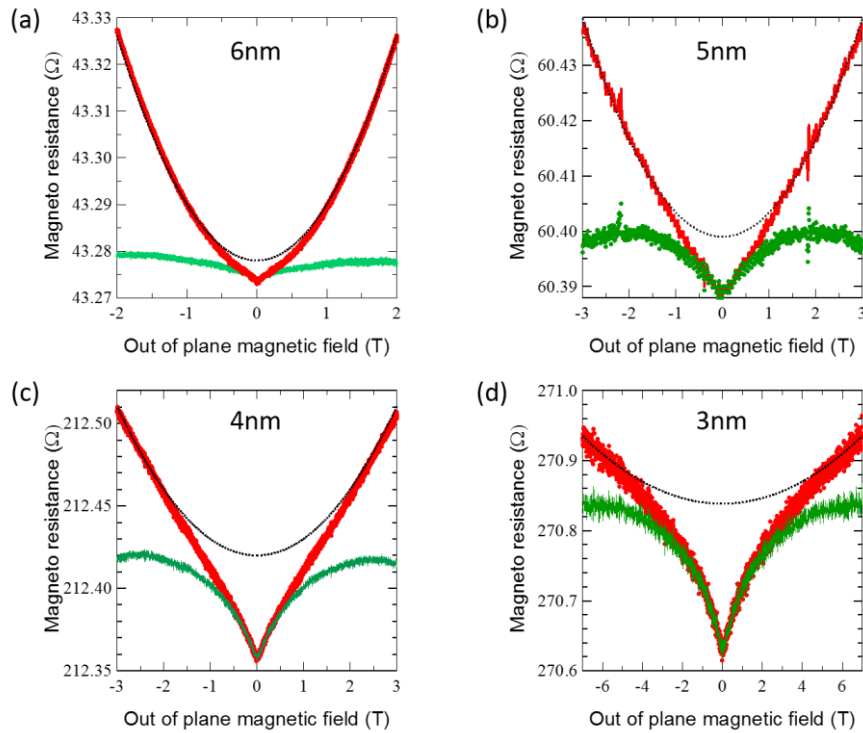


Fig.6. 9 Example of subtracting the classical magnetoresistance in Pt/MgO with (a) 6 nm, (b) 5 nm, (c) 4 nm and (d) 3 nm thickness. Red dots and black line indicate the raw data we obtained and the resistance induced by the classical magnetoresistance, respectively. By subtracting the black line from the red dots, we can extract the innate magnetoresistance originated by the SOI (green dots).

### 6.2.2 Weak anti-localization and its fitting

これからは前節で得られた量子干渉効果から得られた WAL を 5.1 章で紹介したモデルに基づきスピン緩和の評価を行う。また評価された  $\tau_{SO}$  の信頼性に関して議論する。

Fig.6.8 に示されているように、Pt という同様な材料においても結晶性によって WAL が変化していることは無論、膜厚によっても遥かな違いを表している。SOI の変化を定量的に評価するために、MR を磁気伝導度(magneto conductance: MC)  $\Delta\sigma(= \sigma(B) - \sigma(0))$  に変換し、5.1 章で説明した HLN モデル及び ILP モデルに基づいてフィッティングを行った。6.1 節における電気輸送測定の結果から、Pt/MgO の場合は Pt/GaAs と比べ散乱が大変抑制されることが分かった。故に、ここでのフィッティングでは Pt/GaAs の場合は HLN モデルを適用し、Pt/MgO の場合は ILP モデルを当てはめた。Pt/MgO におけるフィッティングの妥当性に関してはこの節の最後に議論する。

Pt/GaAs 及び Pt/MgO におけるフィッティングの結果とそれから得られた $\tau_\phi$ と $\tau_{SO}$ を Fig.6.10 に紹介する。Fig.6.10 (a)と(b)のように、WAL の変化が最大となる領域に集中してフィッティングを行うことで、各膜厚における $\tau_\phi$ と $\tau_{SO}$ が定量的に評価できる。測定温度が一定であるために、 $\tau_\phi$ は結晶性が変わらなければ膜厚に関し大きな変化が観測されなかった(Fig.6.10 (c))。しかし $\tau_{SO}$ の場合をみると、膜厚によって急激に変化していることが明らかである。このような  $\tau_{SO}$ の変化をもたらすメカニズムを調べるためには第2章で述べたように $\tau_p$ との関係に注目する必要がある。

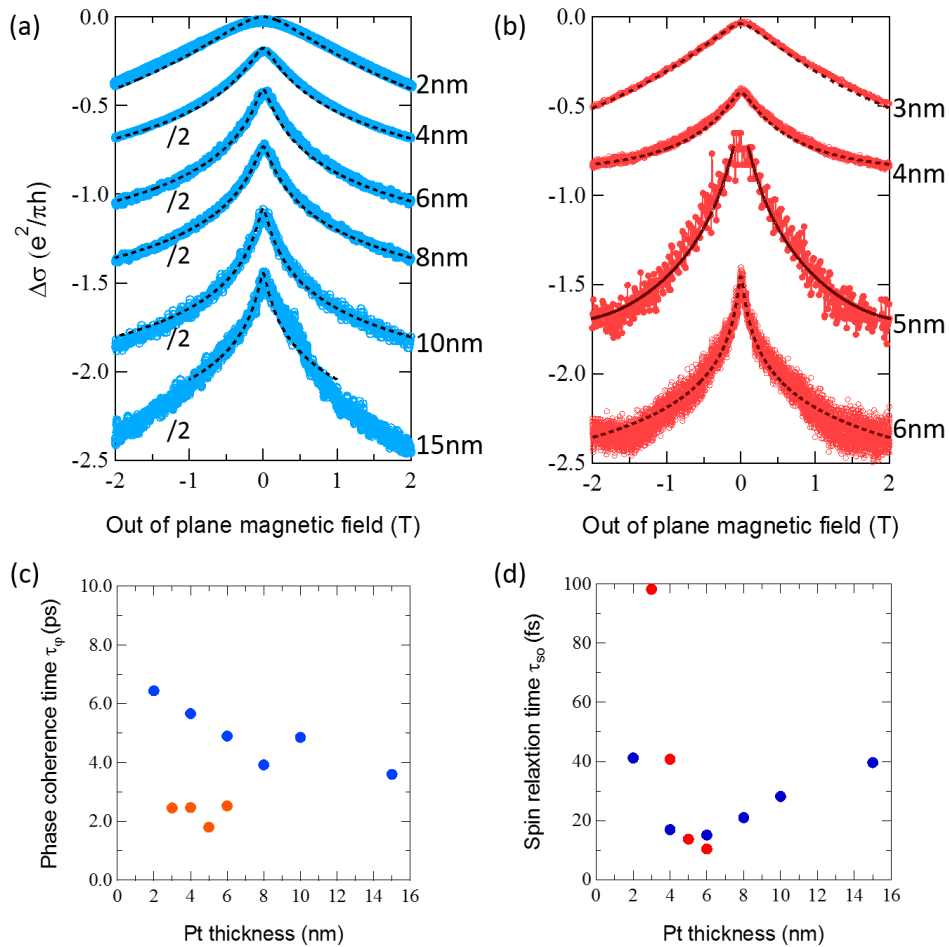


Fig.6. 10 (a) polycrystalline Pt/GaAs(blue lines) and (b) single-crystalline Pt/MgO (red lines). Dark dotted lines are best fitted results based on HLN and ILP theories. (c) and (d) shows Pt thickness dependence of phase coherent length  $\tau_\phi$  and spin relaxation time  $\tau_{SO}$  obtained from the fitted results. In (c) and (d), Blue dots and red dots indicate Pt/GaAs and Pt/MgO, respectively.

スピン緩和メカニズムには大きく分け2つのメカニズムが存在し、散乱(外因性 SOI)からなる EY メカニズムと反転対称性(内因性 SOI—Rashba SOI)からなる DP メカニズムが考慮される。EY と DP から得られる $\tau_{SO}$ は $\tau_p$ との関係で明確な違いを示し、

$$\tau_{SO,EY} \propto \tau_p \quad (\text{EY}) \quad (6.18)$$

$$\tau_{SO,DP} \propto \tau_p^{-1} \quad (\text{DP}) \quad (6.19)$$

となる。つまり EY の場合 $\tau_p$ に比例し $\tau_{SO}$ が得られ、DP の場合は反比例する関係となる。

以上の関係に基づき、Fig. 6.10 のフィティングから得られた $\tau_{SO}$ を 6.1 節で求めた $\tau_p$ についてプロットすると、Fig. 6.11 のようになる。まず多結晶の Pt/GaAs から見ていくと、膜厚が厚い領域( $\tau_p$ が大きい領域)では比例関係を示していることが明らかである。これは従来金属における SOI の起源として知られていた EY を表している。しかし、膜厚が薄くなり、4nm 以下になると比例関係から外れ、 $\tau_{SO}$ が急激に増加している。従って界面に近づくほど DP を考慮したうえでスピン緩和メカニズムを評価する必要性が挙げられる。次に単結晶の Pt/MgO に注目すると(Fig. 6.11(b))、全体の領域にわたって反比例の関係を示し、EY はほぼ観測されず DP が支配的に効いていることを主張している。以上のことは単結晶において抑制された散乱から EY よりも DP の影響が強く表れたと考えられる。

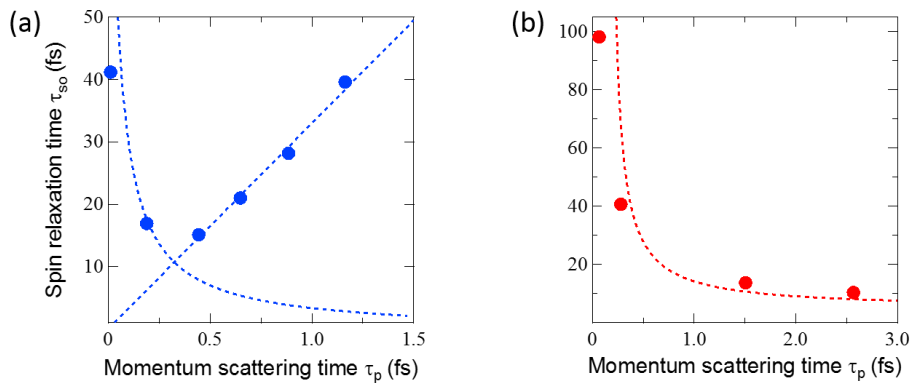


Fig.6. 11 The relationship between  $\tau_p$  and  $\tau_{SO}$  for (a) polycrystalline Pt/GaAs films (b) single-crystalline Pt/MgO films. The guide lines of the EY mechanism ( $\tau_{SO,EY} \propto \tau_p$ ) and DP mechanism ( $\tau_{SO,DP} \propto \tau_p^{-1}$ ) are introduced as the dotted lines to help qualitative understanding.

### 6.2.3 Evaluation of spin relaxation mechanism

Fig. 6.11 から得られる $\tau_{SO}$ と $\tau_p$ の関係は非常に特殊であり、特に両方の試料において膜厚下がることにつれ $\tau_{SO}$ が強調される挙動は DP の存在可能性を強く表している。従って EY に加え DP を取り組むことで全体のスピン緩和を理解することができる。ここでは EY と DP の寄与を定量的に考慮することでスピン緩和メカニズムの評価を試みた。

EY による $\tau_{SO}$ を $\tau_{SO,EY}$ と定義し、DP による $\tau_{SO}$ を $\tau_{SO,DP}$ とした場合全体の $\tau_{SO}$ は次のようにあらわされる。

$$\frac{1}{\tau_{SO,EY}} + \frac{1}{\tau_{SO,DP}} = \frac{1}{\tau_{SO}} \quad (6.20)$$

従って、計算の簡便のため、時間の単位ではなく確率の単位となるスピン緩和レート (Spin relaxation rate:  $\Gamma_{SO} = 1/\tau_{SO}$ ) を導入すると Eq.(6.18) から (6.20) は次のように置き換えることができる。

$$\Gamma_{SO,EY} \propto \Gamma_p \quad (\text{EY}) \quad (6.21)$$

$$\Gamma_{SO,DP} \propto \Gamma_p^{-1} \quad (\text{DP}) \quad (6.22)$$

$$\Gamma_{SO,EY} + \Gamma_{SO,DP} = \Gamma_{SO} \quad (6.23)$$

従って EY と DP の関係における係数をスピン反転確率 (spin flip probability:  $\varepsilon_{imp}$ ) 及び Rashba SOI によるスピンスプリティングエネルギー (spin splitting energy:  $(\Delta_R/\hbar)^2$ ) として任意におくと、全体の $\Gamma_{SO}$ は

$$\Gamma_{SO} = \varepsilon_{imp}\Gamma_p + \left(\frac{\Delta_R}{\hbar}\right)^2 \Gamma_p^{-1} \quad (6.24)$$

として表現される。しかし Eq.(6.24) のまま $\Gamma_{SO}$ を評価することはできない。その理由としては、Rashba SOI の場合界面のポテンシャル差から起因するため、界面付近に存在する電子だけが Rashba SOI を感じる可以考虑される。また Fig.6.7 で調べたように、 $\Gamma_p$ は膜厚が薄くなるほど急激に増加しており、バルクにおける散乱頻度と界面における散乱頻度を分けて考える必要がある。故に、6.1.5 で導入した $C_{inf}$ の概念を当てはめることで Eq.(6.24) を改めて定義すると

$$\Gamma_{SO} = (1 - C_{inf})\varepsilon_b\Gamma_p + C_{inf}\varepsilon_i\Gamma_p + C_{inf}\left(\frac{\Delta_R}{\hbar}\right)^2 \Gamma_p^{-1} \quad (6.25)$$

として書くことなできる。ここで $\varepsilon_b$ と $\varepsilon_i$ はそれぞれバルク状態と界面におけるスピン反転確率を表す。それから $C_{inf}$ が各膜厚において界面を通る確率に相当するパラメータとして考えられることに基づき、 $(1 - C_{inf})$ はバルクを通過する確率、 $C_{inf}$ は界面を通る確率となる。従って Eq.(6.25)における各項は、以下のようなスピン緩和メカニズムを意味する。



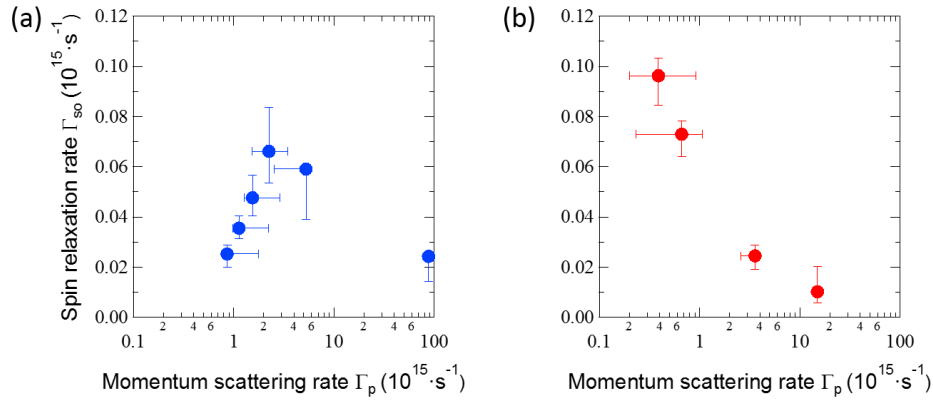


Fig.6. 12 (a),(b) Relationship between  $\Gamma_{SO}$  and  $\Gamma_p$  for polycrystalline Pt/GaAs films and single-crystalline Pt/MgO films, respectively. The x axis of (a) and (b) is described in logarithmic scale.

第1項目:  $\Gamma_{SO,EY\ bulk} = (1 - C_{inf})\epsilon_b\Gamma_p$  バルク状態における EY

第2項目:  $\Gamma_{SO,EY\ interface} = C_{inf}\epsilon_i\Gamma_p$  界面における EY

第3項目:  $\Gamma_{SO,DP\ interface} = C_{inf}\left(\frac{\Delta_R}{\hbar}\right)^2\Gamma_p^{-1}$  界面に存在する Rashba SOI(DP)

DP においては Rashba SOI と共に Dresselhaus SOI が存在するが、金属における結晶反転対称性が破れに関する報告はなされていなく、本研究では Dresselhaus SOI の存在可能性は低いとみなし Rashba SOI だけを考慮した。Fig.6.12 の  $\Gamma_{SO}$  の結果に Eq.(6.25) を適用すると Fig.6.13 のようになり、全体の範囲にわたって  $\Gamma_{SO}$  を説明できることがわかる。またフィッティングから得られる  $\epsilon_b$ 、 $\epsilon_i$  及び  $\Delta_R$  をまとめてみると、Table 6.1 のようにある。フィッティングにおいて 3 変数を扱うことは困難であったため、 $\epsilon_i$  は結晶性に関係せず従来報告されていた EY における  $\epsilon_{imp}(=0.2 \times 10^{-3})$  として一定とみなした[17, 28]。

評価されたパラメータ詳細をみてみると、Pt/GaAs における  $\epsilon_{b,poly}$  は Pt/MgO で図れる  $\epsilon_{b,epi}$  より 4 倍以上高い散乱確率が得られた。この結果は 6.1 節で単結晶にすることで多結晶と比べ散乱が抑制されるという結論と一致しており、単結晶では抑えられた散乱頻度によって EY によるスピン緩和が弱まったと考えられる。従って相対的に DP の影響が強く表れることになる。次に界面における Rashba SOI をみると、 $\Delta_{R,poly}=3.42 \times 10^{-1}$  であり、 $\Delta_{R,epi}=1.85 \times 10^{-1}$  の値が得られた。両方の膜において有意義な Rashba SOI 存在するため界面に近づくほど  $\Gamma_{SO}$  が減少する( $\tau_{SO}$  が増加する)結果が得られたこととなる。またここで  $\Delta_{R,poly}$  と  $\Delta_{R,epi}$  値が異なることから考えると、キャップレイヤーである AlO と Pt の界面だけではなく Pt と基板(GaAs や MgO)の界面も Rashba SOI に寄与していると考えられる。



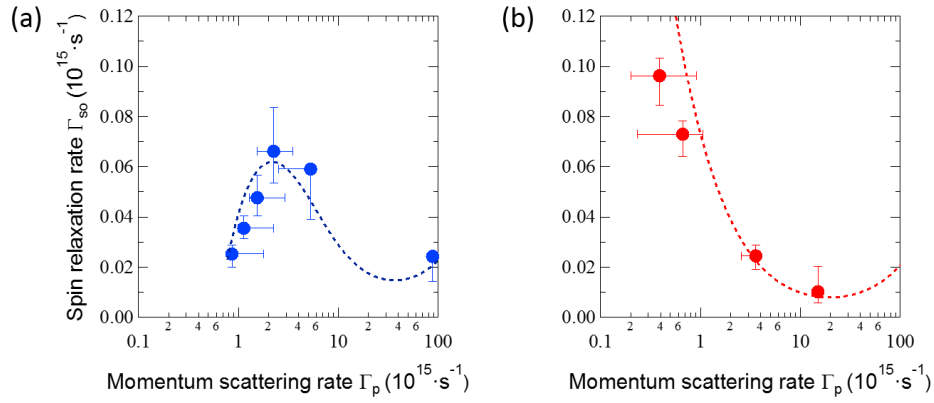


Fig.6. 13 Best fit(dotted line) of spin relaxation mechanism based on Eq. (6.25) for (a) Pt/GaAs, (b) Pt/MgO. In each result, dots the fitted line starts on  $\Gamma_p$  of the Pt film with 15 nm thickness since we defined  $C_{inf}$  as zero in the Pt film with 15 nm thickness.

Table 6. 1 Evaluated parameter in fitting based on Eq.(6.25)

	EY in bulk $\varepsilon_b$	EY at interface $\varepsilon_i$	Rashba SOI $\Delta_R$ (eV)
Polycrystalline Pt Pt/GaAs	$1.99 \times 10^{-3}$	$0.2 \times 10^{-3}$	$3.42 \times 10^{-1}$
Epitaxial Pt Pt/MgO	$\leq 0.5 \times 10^{-3}$	$0.2 \times 10^{-3}$	$1.85 \times 10^{-1}$

### 6.2.4 Electrical manipulation of WAL

6.2.3 で得られた結果は金属においても Rashba SOI によるスピン緩和が界面で存在することを表している。Rashba SOI の場合ゲート電圧によって制御可能であることから [29]、本研究では WAL のゲート変調の実験を行った。金属は通常非常に高い  $n$  を有するために、通常の固体ゲートからは  $n$  の制御が大変難しいため、電気二重層(electric double layer:EDL)を用いチャンネルにゲートを印加した(Fig.6.14(a)) [30,31]。

最初に Pt(3nm)/MgO におけるゲートによる WAL の結果をみると、低磁場側では MC の変化が明確には見えないが高磁場にいくほどその違いが表れることが観測された (Fig.6.14(b))。この結果は Rashba SOI がスピン緩和に寄与していることを実証している。ゲート電圧による MC の変化が小さすぎるために定量的 Rashba SOI を評価することは困難であるが、正の方向にゲート電圧をかけることに比例し MC が抑えられることから、Rashba parameter  $\alpha$  は減少される傾向を示している。しかし Pt(4nm)/GaAs の WAL の結果をみると、高磁場領域にいても MC はほぼ変化していない結果が得られた (Fig.6.14(d))。これは Pt/GaAs において  $\Delta_{R,poly}$  の値が比較的に大きくても、EY の影響が顕著であるためにその違いが明確に得られなかったと考えられる。

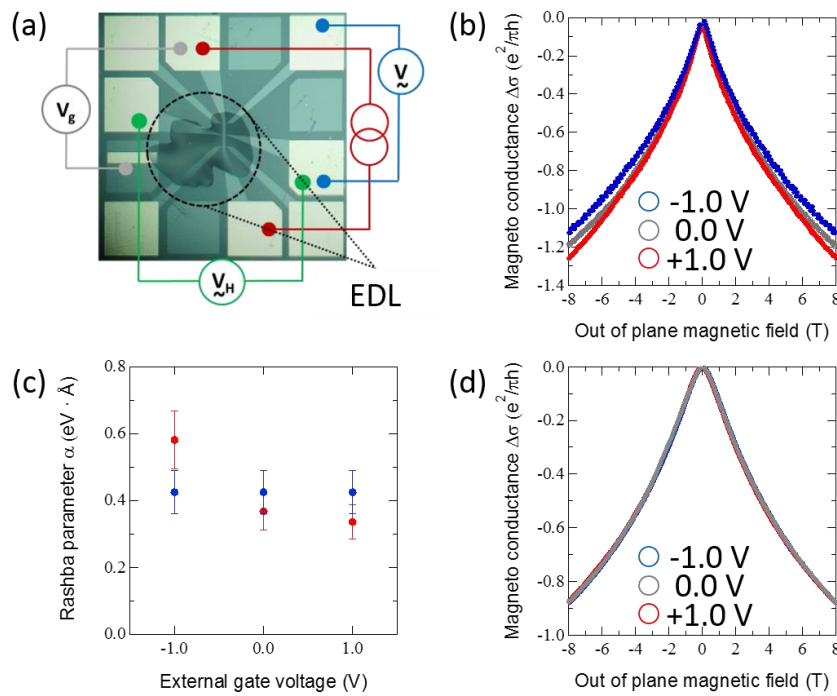


Fig.6. 14 (a) Schematic for applying external gate voltage  $V_g$  by EDL. (b), (d)  $V_g$  dependence of WAL of (b) Pt(3nm)/MgO and (d) Pt(4nm)/GaAs. Each of blue, gray, red dots corresponds to MC of  $V_g = -1.0$  V,  $0.0$  V,  $+1.0$  V. (c) Evaluated Rashba parameter from (b) and (d). Blue dots and red dots indicate Pt/GaAs and Pt/MgO, respectively.

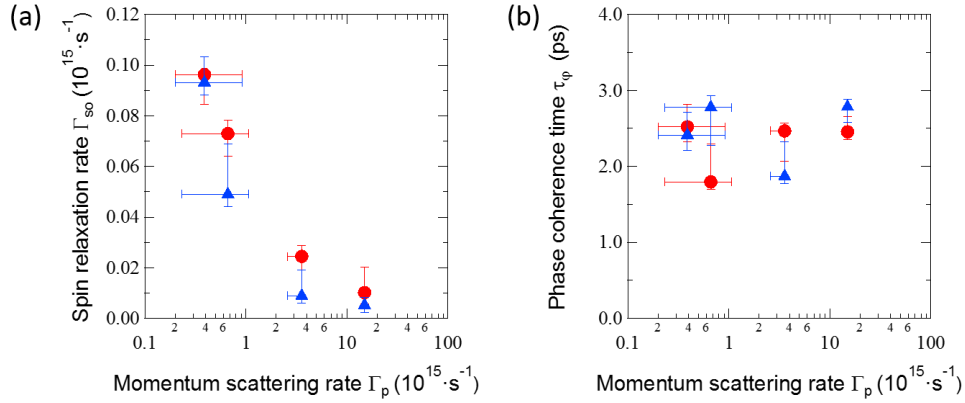


Fig.6. 15 Fig. S2. All fitting parameters are given: (a) the relationship between  $\Gamma_{so}$  and  $\Gamma_p$  for Pt/MgO films. (b)  $\tau_\phi$  as a function of  $\Gamma_p$ . The x-axis is described in logarithmic scale. Red Circles and blue triangles indicate  $\Gamma_{so}$  obtained by ILP formula and HLN formula.

以上の実験は金属においてもスピン緩和をゲート電圧により制御できる可能性を表している。しかしより顕著な変化を導きだすためには金属が有する短い遮蔽距離 (Tomas-Fermi length, 通常 1nm 以下) より薄い膜厚を設計するか、より強いゲート電圧を以下する方法を探すなど実験的工夫が必要されと考える。

#### 6.2.4 Fitting to theoretical formula in Pt/MgO

ここでは 6.2.2 で行った単結晶の Pt/MgO のフィッティングにおける信頼性について議論する。Fig.6.10 で得られる MC は HLN モデル[32] 及び ILP モデル[33] の両方とも適用することができ、その結果を Fig.6.15 に示す。両方のモデルにから得られる  $\tau_\phi$  及び  $\Gamma_{so}$  は全体的に相似しており、EY よりは DP に近い挙動を見せている。しかし電気輸送測定の結果から考えると、Fig.6.7(a)のように  $\Gamma_p$  は単結晶において非常に抑制されている。それから Fig.6.7(b)からみると単結晶における散乱はバルク散乱よりは殆ど界面散乱から得られることがわかる。Rashba SOI の起源が界面であるため、単結晶では必然的に Rashba SOI 影響を感じると推論することができ、Pt/MgO の解析には ILP モデルに基づいて議論を行った。また 6.2.1 で導入したローレンツ力による MR 寄与の排除法の妥当性は、WAL の温度依存性を測定することから確認できる。排除後真の WAL だけ残っているのであれば、量子干渉効果から得られる  $\tau_\phi$  は高温になるほど減少する傾向を示すはずである。それに対し、SOI は温度によらないため  $\Gamma_{so}$  はほぼ一定の温度依存性として観測されると予想できる[34-36]。Pt(5nm)/MgO において WAL の温度依存性を測った結果、Fig. 6.16 (b)に示されているように、 $\tau_\phi$  は測定温度に反比例する関係を見せているが、 $\Gamma_{so}$  ではその変化が小さいことからローレンツ力による MR 寄与の排除法は信頼できると判断できる。

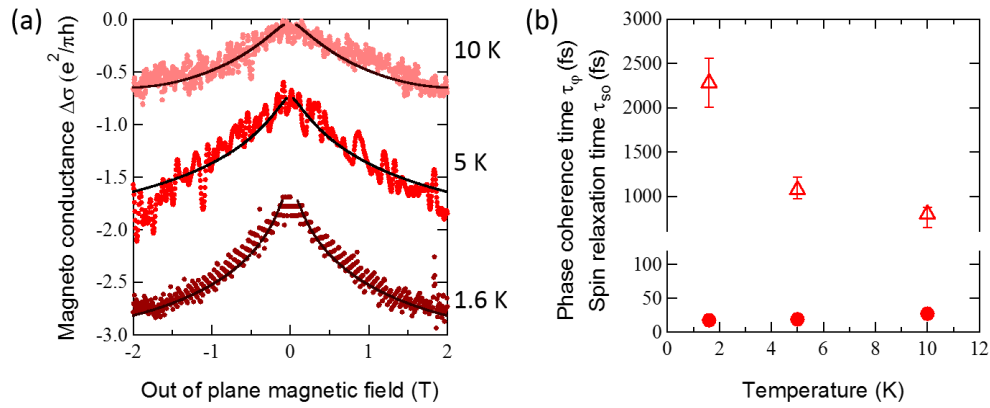


Fig.6. 16 (a) Temperature dependence of WAL in Pt(5nm)/MgO. Dark dotted lines are best fitted results based on ILP theory. (b)  $\tau_\phi$  (triangle) and  $\Gamma_{s0}$  (circle) in Pt(5nm)/MgO depending on the temperature.

### 6.2.5 Spin relaxation length of Pt in both crystal structures

$L_{s0}$ は $\Gamma_{s0}$ および  $D$  の関係( $L_{s0} = \sqrt{D/\Gamma_{s0}}$ )から容易に求められ、膜厚との比較から DP が観測できる次元性について考えることができる。Fig.6.17 に Pt/MgO 及び Pt/GaAs における膜厚による $L_{s0}$ の結果が示されている。 $\Gamma_{s0}$ と同様に $L_{s0}$ は膜厚により急激な変化をしていることが見られる。ここで Pt/GaAs おける $L_{s0}$ に注目してみると、すべての領域において $L_{s0}$ は膜厚より小さい。しかし Pt/MgO では $L_{s0}$ は膜厚が下がることで減少してはいるが常に膜厚より長い結果が得られた。Pt/MgO では DP が顕著に表れたことから、 $L_{s0}$ が膜厚より長く量子干渉の観点から 2 次元的な構造を作る環境で DP が観測されやすくなると考えられる。

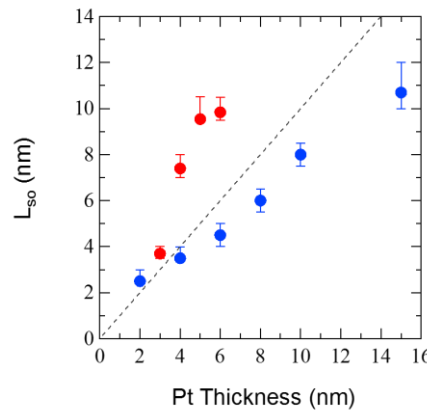


Fig.6. 17 Pt thickness dependence of  $L_{s0}$ . The blue dots and red dots correspond to  $L_{s0}$  for Pt / GaAs and Pt / MgO, respectively. The dashed line shows guide line for indicating the thickness.

### 6.3 Conclusion

本章ではエピタキシャル成長された Pt(Pt/MgO)及び多結晶構造を有する Pt(Pt/GaAs)を用意し、それぞれの膜厚による電気輸送測定と量子干渉効果を測定することで Pt の結晶性によるスピン緩和メカニズムについて探った。

まず電気輸送測定の結果をみると、結晶性により明らかな違いを示した。例えばシート抵抗の場合、Pt/MgO は Pt/GaAs と比べ遥かに小さい値が得られ、移動度の場合は Pt/MgO の方が大きくなる結果が見られた。以上の結果を用い $\tau_p$ として表すと、Pt/MgO の方が Pt/GaAs より長く、散乱頻度が少ないことが明らかとなる。本結果はエピタキシャル構造が有する規則正しい結晶構造によって結晶粒界及び転位による散乱が大変抑制されることを意味し、スピン緩和にも影響を及ぼすと考えられる。一方、膜厚による電気輸送測定の結果をみると、結晶性によらず膜厚がさがることによって $\tau_p$ は減少し、界面に近づくにつれ散乱頻度が大きい増加することがわかった。従って界面による散乱の影響を定量的に考慮する必要があり、バルクにおける伝導と界面散乱による伝導を分けて考えることで界面における散乱頻度 $C_{inf}$ を導入した。

次に量子干渉効果の実験を行うことで、膜厚及び結晶性によるスピン緩和の評価を行った。Pt/GaAs では $\tau_{SO}$ が $\tau_p$ と比例関係を示し、一般的に知られている金属のスピン緩和メカニズムである EY が支配的であると考えられる。しかし膜厚が薄い領域では比例関係から外れる傾向を示し、DP の存在可能性が挙げられる。それに対し、Pt/MgO では $\tau_{SO}$ が $\tau_p$ が反比例する関係が得られることから、EY は適用されず、DP によるスピン緩和が主に寄与すると主張できる。以上のスピン緩和メカニズムをより定量的に議論するために、 $\tau_{SO}$ が $\tau_p$ を $\Gamma_{SO}$ 及び $\Gamma_P$ で表すことで膜厚に対する全ての領域において EY と DP の寄与を調べた。また電気輸送測定の結果から得られた界面における散乱頻度 $C_{inf}$ を取り組み、バルクにおける EY、界面における EY それから界面に存在する DP を考慮した $\Gamma_{SO}$ のモデルを構築した。本モデルから全領域における $\Gamma_{SO}$ を説明することができ、各試料における EY 及び DP の寄与を定量的に導き出した。故に、Pt/MgO では Pt/GaAs と比べ EY の影響が著しく抑制され、相対的に DP の影響が強調されることが明らかになった。更に本研究で扱っている DP は界面における Rashba SOI である可能性が高いことから考えると、外部電圧を印加することでスピン緩和を制御できると予想できる。電気二重層を用いた外部電圧による量子干渉効果の実験から、印加電圧により WAL が変化する結果が観測され、金属においてもスピン緩和を電氣的に制御することが可能であることを実証した。

本章で行った Pt の結晶性及び膜厚によるスピン緩和の実験から、従来まで知られていた散乱による EY だけではなく DP を考慮する上で Pt のスピン緩和が説明できることが導かれた。またエピタキシャル構造にすることで EY が抑制でき、DP が強調されることが明らかになった。以上の結果は近年金属系において報告された様々な SOI のパラメータに対する答案を提示しているとともに、スピン緩和メカニズムを用いることで金属 SOI のエンジニアリングが得られることを示す重要な実験であるといえる。

## Reference

- [1] A. Manchon, H. C. Koo, J. Nitta, S. M. Frolov, and R. A. Duine, *Nat. Mater.* **14**, 871 (2015).
- [2] I. M. Miron et al., *Nat. Mater.* **9**, 230 (2010); I.M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, and P. Gambardella, *Nature (London)* **476**, 189 (2011).
- [3] L. Liu, O. J. Lee, T. J. Gudmundsen, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 096602 (2012).
- [4] M. Yamanouchi, D. Chiba, F. Matsukura, and H. Ohno, *Nature (London)* **428**, 539 (2004).
- [5] T. Koyama et al., *Nat. Mater.* **10**, 194 (2011).
- [6] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Nature (London)* **455**, 778 (2008).
- [7] K. Uchida, M. Ishida, T. Kikkawa, A. Kirihara, T. Murakami, and E. Saitoh, *J. Phys. Condens. Matter* **26**, 343202 (2014).
- [8] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Science* **306**, 1910 (2004).
- [9] S. Takahashi and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 116601 (2002).
- [10] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 156601 (2007).
- [11] M. Morota, Y. Niimi, K. Ohnishi, D. H. Wei, T. Tanaka, H. Kontani, T. Kimura, and Y. Otani, *Phys. Rev. B* **83**, 174405 (2011).
- [12] K. Ando et al., *J. Appl. Phys.* **109**, 103913 (2011).
- [13] M. Weiler et al., *Phys. Rev. Lett.* **111**, 176601 (2013).
- [14] V. Castel, N. Vlietstra, J. B. Youssef, and B. J. V. Wees, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 132414 (2012).
- [15] Z. Qiu, K. Ando, K. Uchida, Y. Kajiwara, R. Takahashi, H. Nakayama, T. An, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 092404 (2013).
- [16] M. Althammer et al., *Phys. Rev. B* **87**, 224401 (2013).
- [17] H. Nakayama, K. Ando, K. Harii, T. Yoshino, R. Takahashi, Y. Kajiwara, K. Uchida, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, *Phys. Rev. B* **85**, 144408 (2012).
- [18] Y. Niimi, D. Wei, H. Idzuchi, T. Wakamura, T. Kato, and Y. Otani, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 016805 (2013).
- [19] A. Bendounan, K. Aït-Mansour, J. Braun, J. Minár, S. Bornemann, R. Fasel, O. Gröning, F. Sirotti, and H. Ebert, *Phys. Rev. B* **83**, 195427 (2011).
- [20] 金属電子論(下)、水谷宇一郎、内田老鶴圃 (1996).
- [21] 格子欠陥、藤田英一、朝倉書店 (1980).
- [22] 半導体の物理、御子柴宣夫、培風館 (1982).
- [23] T. Dosdale and D. Livesay, *J. Phys. F : Metal Phys.*, **4**, 68 (1974)
- [24] O. K. Anderson, *Phys. Rev. B.*, **2**, 4 (1970).

- [25] <http://crystdb.nims.go.jp>,  $E_F = 13.28$  (eV)
- [26] Fundamentals of the theory of metals, A. A. Abrikosov, Elsevier Science (1988).
- [27] K. Liu, C. L. Chien, P. C. Searson, and K. Yu-Zhang, Appl. Phys. Lett., **73**, 1436 (1998).
- [28] F. J. Jedema, A. T. Filip, and B. J. van Wees, Nature (London) **410**, 345 (2001); F. J. Jedema, M. S. Nijboer, A. T. Filip, and B. J. van Wees, Phys. Rev. B **67**, 085319 (2003).
- [29] S. J. Gong et. al., Phys. Rev. B **87**, 035403 (2013).
- [30] H. Nakayama, et al., Appl. Phys. Exp. **5**, 023002 (2012).
- [31] S. Shimizu, et al., Phys. Rev. Lett. **111**, 216803 (2013).
- [32] S. Hikami et al., Prog. Theor. Phys. **63**, 707 (1980).
- [33] S. V. Iordanskii et al., JETP Lett. **60**, 206 (1994); K. Wnap et al., Phys. Rev. B **70**, 233311 (2004).
- [42] D. A. Poole, M. Pepper, and A. Hughes, J. Phys. C **15**, L1137 (1982).
- [43] S. A. Studenikin, P. T. Coleridge, N. Ahmed, P. J. Poole, and A. Sachrajda, Phys. Rev. B **68**, 035317 (2003).
- [44] A. E. Hansen, M. T. Björk, C. Fasth, C. Thelander, and L. Samuelson, Phys. Rev. B **71**, 205328 (2005).



## 7. Spin orbit torque in Co/Pt bilayer system depending on Pt crystal structure

第 6 章で行った結果から、Pt の結晶性及び膜厚によってスピン緩和メカニズムが非常に依存することが明らかになった。この結果は金属の結晶構造や膜厚のエンジニアリングによって SOI を変調可能であることを示唆している。しかし第 6 章で行った量子干渉効果の実験は全て 1.6K という極低温で測定され、室温においても結晶性によるスピン緩和メカニズムが維持されるとは限らない。実際スピントロニクスデバイスへの応用のためには室温での動作が要求されるため、室温における適用性を確かめる必要がある。ただし量子干渉効果の場合、温度を上げると干渉効果が崩れるため SOI の評価が困難となり、室温で評価できる新たな測定方法を見つける必要がある。

従って本章では Co/Pt バイレイヤー構造から得られる SOT に注目した。第 2 章で詳しく紹介したように、SOT では HM(ここでは Pt)からなる SOI がトルクとして FM(ここでは Co)の磁化に影響を及ぼす。よって結晶性が異なる Pt から得られる SOT を定量的に評価することで室温における SOI を見積もることができ、また SOI はスピン緩和と関連していることから第 6 章の結果と結びつくことができると予想される。

Pt の結晶構造が異なる Co/Pt バイレイヤー構造としては 4.2 で構築した MgO(111)及び MgO(100)基板上に成長した Co/Pt の構造を用いた。本試料において Pt の場合 3nm の膜厚であり、単結晶 Co/Pt における磁気異方性を小さくするために Co の場合 1.05nm と設計した。測定方法としては 5.2 で紹介したハーモニック測定法を用いた。得られる SOT の信頼性を上げるために、低磁場及び高磁場によるハーモニック測定[1-3]を用い、両方から得られる SOT のクロスチェックを行った。それぞれに関する結果は 7.1 と 7.3 で中心的に説明する。また本実験から単結晶 Co/Pt において結晶構造から起因するホール効果が初めて観測され、それに関する詳しい議論を 7.2 で述べる。最後に、SOT による磁化反転の実験を説明し、結晶性から起因する SOT のメモリデバイスとしての応用可能性を示す。

なお、第 7 章の実験結果において、第 6 章の記述と同様に特に追記がない限り多結晶 Co/Pt(AlO/Co/Pt/MgO(100): Co/Pt(P))は青色で、単結晶 Co/Pt (AlO/Co/Pt/MgO(111): Co/Pt(S))は赤色でプロットする。また実験系の詳細に入る前に本研究で適用している座標系を Fig.7.1(a)に示す。ここでは磁場や磁化の情報を効率的に表すためにデカルト座標系(Cartesian coordinate system)ではなく球面座標系(spherical coordinate system)を用いた。それから Fig.7.1(b)は Co/Pt(P)と Co/Pt(S)の磁化容易軸方向に磁場を印加した場合の AHE であり、両方の試料とも PMA を有している。

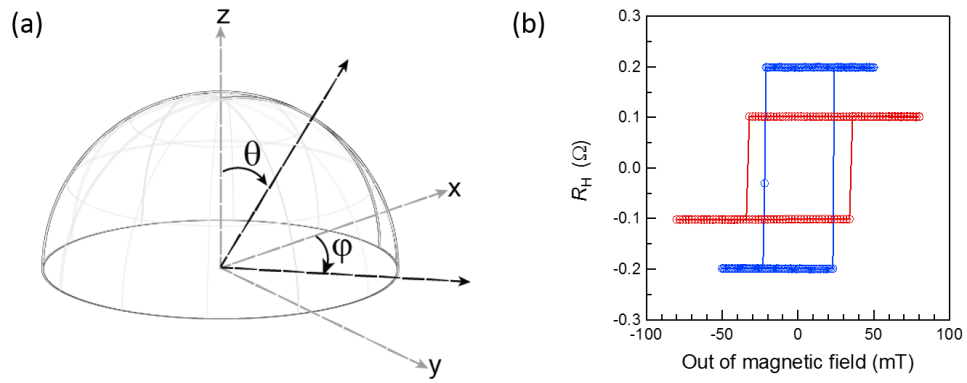


Fig.7. 1 (a) Coordinate system in this chapter. (b) Hysteresis loop (resistance of  $\mathbf{Mz}$  measured by 1<sup>st</sup> harmonic) of Co/Pt(P) (blue dots) and Co/Pt(S) (red dots).

## 7.1 Harmonic measurement at low magnetic field

PMA を持つ HM/FM バイレイヤー構造に単磁区を保たれる程度の面内磁場を印加しながら交流電流による AHE を測定すると、SOT による振幅の変化が 2 次のハーモニック成分として検出されることを 5.2 で紹介した(低磁場によるハーモニック測定法)。ここでは Co/Pt(P) と Co/Pt(S) において低磁場によるハーモニック測定法を行った実験結果及び評価される SOT について述べる。最初に測定の概略を Fig.7.2 に載せる。本測定では、外部磁場方向  $\theta_B \approx 90^\circ$  として、低磁場を印加するため磁化が  $\theta \approx 0^\circ$  における SOT を評価することにある<sup>1</sup>。また  $B_{SL}$  及び  $B_{FL}$  が示す特性から、外部磁場の面内方向を  $\varphi_B = 0^\circ$  にすることで  $B_{SL}$  を、 $\varphi_B = 90^\circ$  にすることで  $B_{FL}$  の評価を行った<sup>2</sup>。ここで電流は常に  $x$  方向( $\varphi_B = 0^\circ$ )に設定しホール電圧を検出する(Fig.7.2)。

### 7.1.1 Harmonic signal of $V_f$ and $V_{2f}$

低磁場によるハーモニック測定法において 1 次のハーモニック電圧( $V_f$ )はある外部磁場を印加した際の磁化の平衡状態を表し、2 次のハーモニック電圧( $V_{2f}$ )は平衡状態において SOT による振幅の変化に相当する。従って  $B_{SL}$  と  $B_{FL}$  は以下の関係から求められる。

$$B_{SL} = 2 \left( \frac{dV_{2f}(\varphi_B = 0^\circ)}{dB_{\varphi_B=0^\circ}} \right) / \left( \frac{d^2V_f(\varphi_B = 0^\circ)}{dB^2_{(\varphi_B=0^\circ)}} \right) \quad (7.1)$$

$$B_{FL} = 2 \left( \frac{dV_{2f}(\varphi_B = 90^\circ)}{dB_{\varphi_B=90^\circ}} \right) / \left( \frac{d^2V_f(\varphi_B = 90^\circ)}{dB^2_{(\varphi_B=90^\circ)}} \right) \quad (7.2)$$

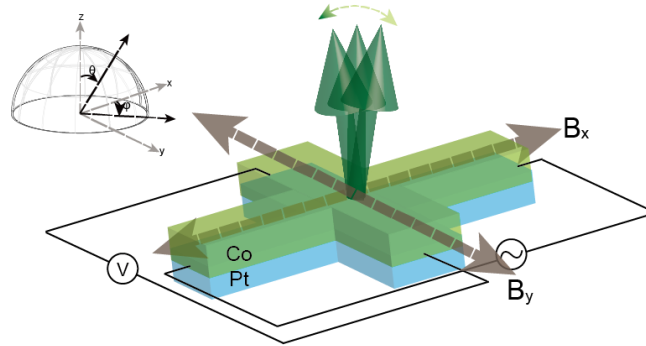


Fig.7. 2 Schematic for Harmonic measurement at low magnetic field. AC current flows to  $x$  direction and  $V_H$  detects the Hall voltage. In plane magnetic field is applied to  $x$  direction( $\varphi_B = 0^\circ$ ) or to  $y$  direction( $\varphi_B = 90^\circ$ ) depending on the torque characteristics.

<sup>1</sup> 本章では記述の簡便性のため  $\theta_M = \theta$ ,  $\varphi_M = \varphi$  として表す。

<sup>2</sup> Antidamping-like torque( $B_{AD}$ ) と Slonczewski-like torque( $B_{SL}$ ) は同様の意味を持ち、ここでは  $B_{SL}$  として表現する。

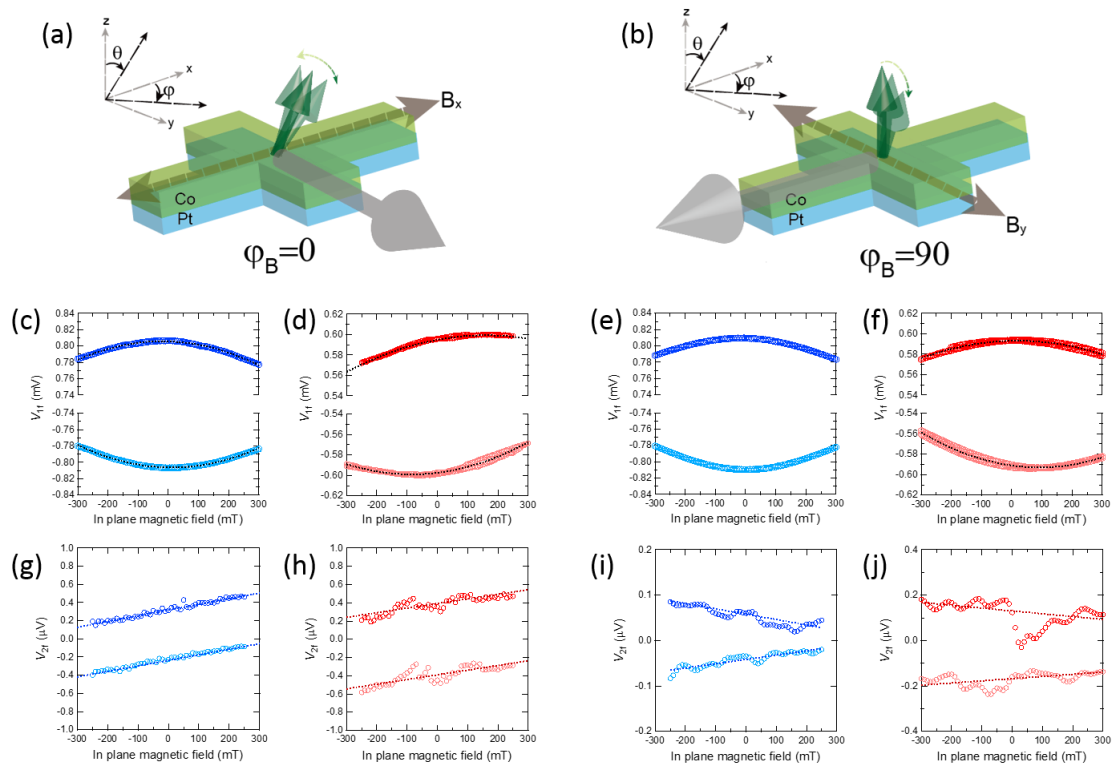


Fig.7. 3 Schematics of harmonic measurement of in plane magnetic field applied to (a)  $\varphi_B = 0^\circ$  and (b)  $\varphi_B = 90^\circ$ . (c,e), (g,i) corresponds to  $V_f$  and  $V_{2f}$  in Co/Pt(P). (d,f), (h,j) indicates to  $V_f$  and  $V_{2f}$  in Co/Pt(S). Each graph below (a) and (b) is the case of  $\varphi_B = 0^\circ$  and  $\varphi_B = 90^\circ$ , respectively. From (c) to (j), dark color and light color corresponds to 'up' ( $M_z+$ ) or 'down' ( $M_z-$ ) magnetized states. The black dotted line is also introduced for easy understanding.

Co/Pt(P)と Co/Pt(S)から得られた $V_f$ と $V_{2f}$ の結果を Fig.7.3 に示す。ここで左側の結果は $\varphi_B = 0^\circ$ に磁場を印加した場合であり、 $B_{SL}$ に関わる信号が得られ、右側の結果は $\varphi_B = 90^\circ$ に磁場をかけており $B_{FL}$ からなる結果を表す。まず $V_f$ から見ていくと、Co/Pt(P)では $\varphi_B$ の角度に殆どよらず、典型的な磁化困難軸に磁場を印加した場合の $V_f$ を示している。しかし Co/Pt(S)の場合は $V_f$ がゼロ磁場を基準とし対称ではない挙動を示しており、 $V_f$ の最大値(あるいは最小値)がゼロ磁場から外れていることがCo/Pt(P)の結果と比べると容易にわかる。更に、 $\varphi_B$ が $0^\circ$ の場合と $90^\circ$ の場合で非対称性が変化しており、外部磁場の方向による依存性を示す可能性がある。この非対称成分は Co/Pt(S)だけに現れていることから、結晶性に起因した影響であると考えられ、詳しい議論は7.2で行う。

次に、 $V_{2f}$ では Co/Pt(P)と Co/Pt(S)において相似した結果が観測された。第2章で説明したように、 $B_{SL}$ は磁化の方向によらないため( $\propto \mathbf{M} \times \mathbf{y} \times \mathbf{M}$ )、正の面直磁化( $M_Z +$ )と負の面直磁化( $M_Z -$ )で同様な傾きが得られる。それに対し $B_{FL}$ は磁化の方向により符号が反転し( $\propto \mathbf{y} \times \mathbf{M}$ )、 $M_Z +$ と $M_Z -$ で傾きが逆であることがわかる。

以上の結果から得られる $V_f$ 及び $V_{2f}$ を Eq.(7.1-2)に当てはめることで各試料における $B_{SL}$ と $B_{FL}$ が求められる。それから $B_{SL}$ と $B_{FL}$ は印加電流に比例することから、印加電圧による $V_f$ 及び $V_{2f}$ を測定し、同様な計算を繰り返すとより正確な $B_{SL}$ と $B_{FL}$ が得られることになる。 $V_f$ と $V_{2f}$ の印加電圧依存性の結果は Fig. 7.4 に載せておく。

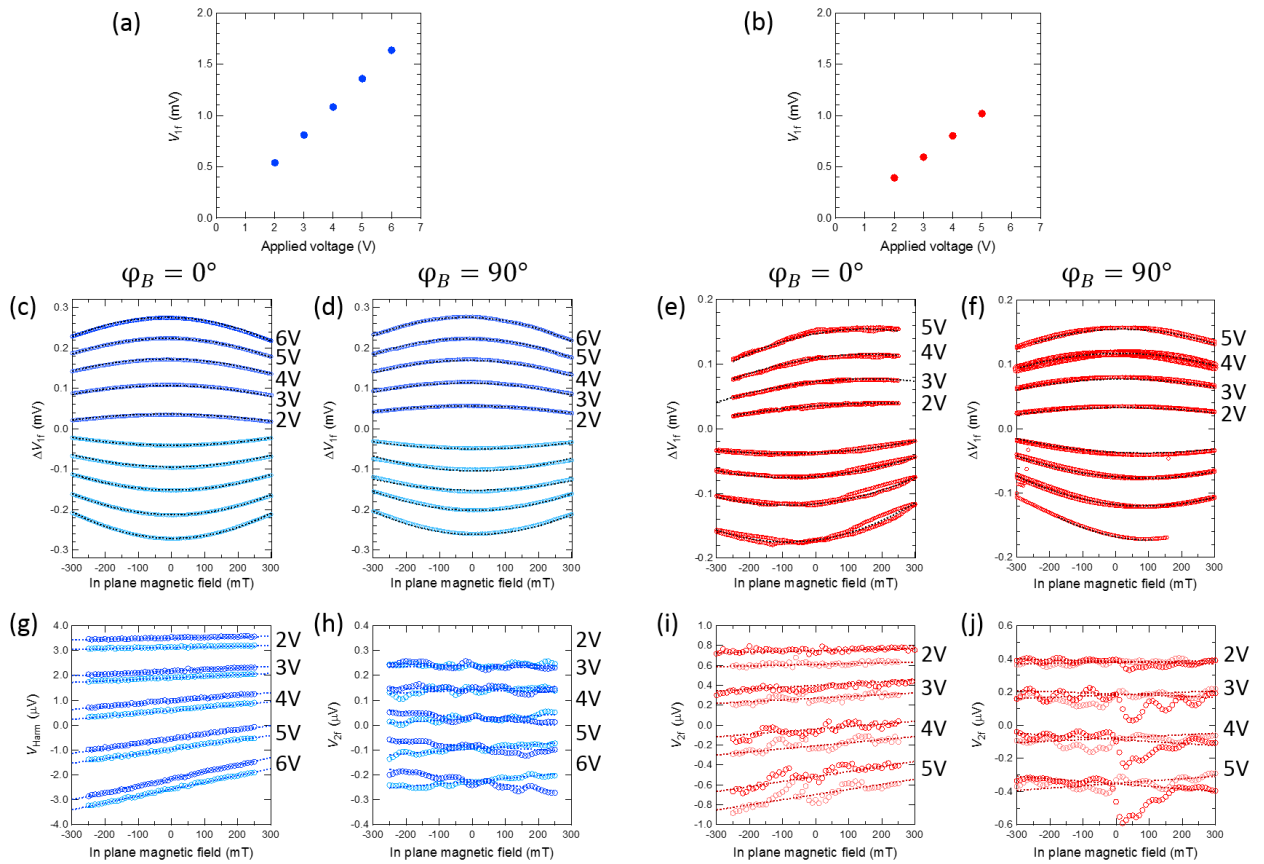


Fig.7. 4  $V_f$  and  $V_{2f}$  depending on applied voltage. (a) and (b) indicates the  $V_f$  of  $M_Z +$  at zero magnetic field in Co/Pt(P) and Co/Pt(S).  $V_f$  of  $M_Z -$  is equal to  $-V_f$ . (c) and (d) shows the  $\Delta V_f$  as a function of applied voltage in Co/Pt(P) of  $\phi_B = 0^\circ$  and  $\phi_B = 90^\circ$ , respectively. (e) and (f) corresponds to the case of Co/Pt(S). In (c-f)  $V_f$  is offsetted to highlight the change of  $V_f$ . (g) and (h) indicates  $V_{2f}$  as a function of applied voltage in Co/Pt(P) of  $\phi_B = 0^\circ$  and  $\phi_B = 90^\circ$ , respectively. (i) and (j) corresponds to the case of Co/Pt(S). From (c) to (j), dark color and light color corresponds to 'up' ( $M_Z +$ ) or 'down' ( $M_Z -$ ) magnetized states. The black dotted line is also introduced for easy understanding.

### 7.1.2 Planar Hall effect correction

ハーモニック測定法からホール電圧を測定すると、面内方向に磁場を印加するため磁化は必ず面内成分を有する。その場合面内磁化成分と電流が作る角度が $\varphi$ に依存した磁気抵抗が生じ、これを面内ホール効果(Planar Hall effect: PHE)と呼ぶ[4,5]。故に、実際得られるホール電圧 $V_{XY}(=V_f)$ は AHE による $V_A$ と PHE による $V_{PHE}$ が混在した形で得られ、式で表すと次のようになる。

$$V_{XY} = V_A \cos\theta + V_P \sin^2\theta \sin(2\varphi) \quad (7.3)$$

Eq.(7.3)において第1項は AHE、第2項は PHE を表す。従って SOT を正確に評価するためには 7.1.1 で得られた結果から PHE の寄与を排除する必要がある。その方法は先行研究によって既に構築されており[2,3,6]、ここでは概略な課程だけを説明する。

Eq.(7.3)からみると、PHE は $\sin(2\varphi)$ に依存するため $\varphi = 0^\circ, 90^\circ$ の場合は消滅し、 $\varphi = 45^\circ$ では最大になることがわかる。 $\varphi_B = 0^\circ$ と $\varphi_B = 45^\circ$ の場合の $V_{XY}$ を書くと

$$V_{XY}^0 = V_A \cos\theta \quad (7.4)$$

$$V_{XY}^{45} = V_A \cos\theta + V_P \sin^2\theta \quad (7.5)$$

となり、Eq.(7.5)から Eq.(7.4)を引くと

$$V_{XY}^{45} - V_{XY}^0 = V_P \sin^2\theta \quad (7.6)$$

PHE の信号だけが残ることになる。ここで $V_A$  は磁化容易軸( $\theta_B = 0^\circ$ )に磁場を印加することで簡単に求り (Fig.7.1(b))、また $\varphi_B$ による一定であることがわかる( $\because \sin^2\theta \cong 0$ )。従って Eq.(7.5)と Eq.(7.4)を $V_A$  に対し規格化すると

$$\widehat{V}_{XY}^0 = \cos\theta \quad (7.7)$$

$$\widehat{V}_{XY}^{45} = \cos\theta + \frac{V_P}{V_A} \sin^2\theta \quad (7.8)$$

同様に Eq.(7.8)から Eq.(7.7)を引くと下記のような式にたどり着く。

$$\Delta V_{PHE}^{45-0} = V_{XY}^{45} - V_{XY}^0 = \frac{V_P}{V_A} \sin^2\theta = \frac{V_P}{V_A} (1 - \cos^2\theta) = \frac{V_P}{V_A} (1 - (V_{XY}^0)^2) \quad (7.9)$$

つまり PHE と AHE の比 $\xi(= (V_P / V_A) = (R_P / R_A))$ は、 $\varphi_B = 0^\circ$ の場合得られる $V_f$ を規格化し $\theta$ の情報として書き換え、規格化された $V_f(\varphi_B = 0^\circ)$ と $V_f(\varphi_B = 45^\circ)$ の差に対しプロットすることで求まることを意味する。以上の方法に基づいて Co/Pt(P)と Co/Pt(S)における $\xi$ を見積もった結果を Fig.7.5 に示す。 Fig.7.5(a)と(b)に表れているように、 $V_f(\varphi_B = 45^\circ)$ でのホール電圧は $V_f(\varphi_B = 0^\circ)$ と比べ明らかな違いを示しており、考慮すべき PHE が存在していることを意味する。ここで Co/Pt(S)の場合はその結果を規格化し、求められた $\Delta V_{PHE}^{45-0}$ を $(V_{XY}^0)^2$ に対しプロットすると Fig.7.5(e)のような結果が得られる。その傾きが PHE と AHE の比 $\xi$ に相当し、 $\xi(\text{Co/Pt(P)}) \approx 0.37$ 、 $\xi(\text{Co/Pt(S)}) \approx 0.44$ という結果が得られた。本結果は Co/Pt(S)において非常に高い PHE が



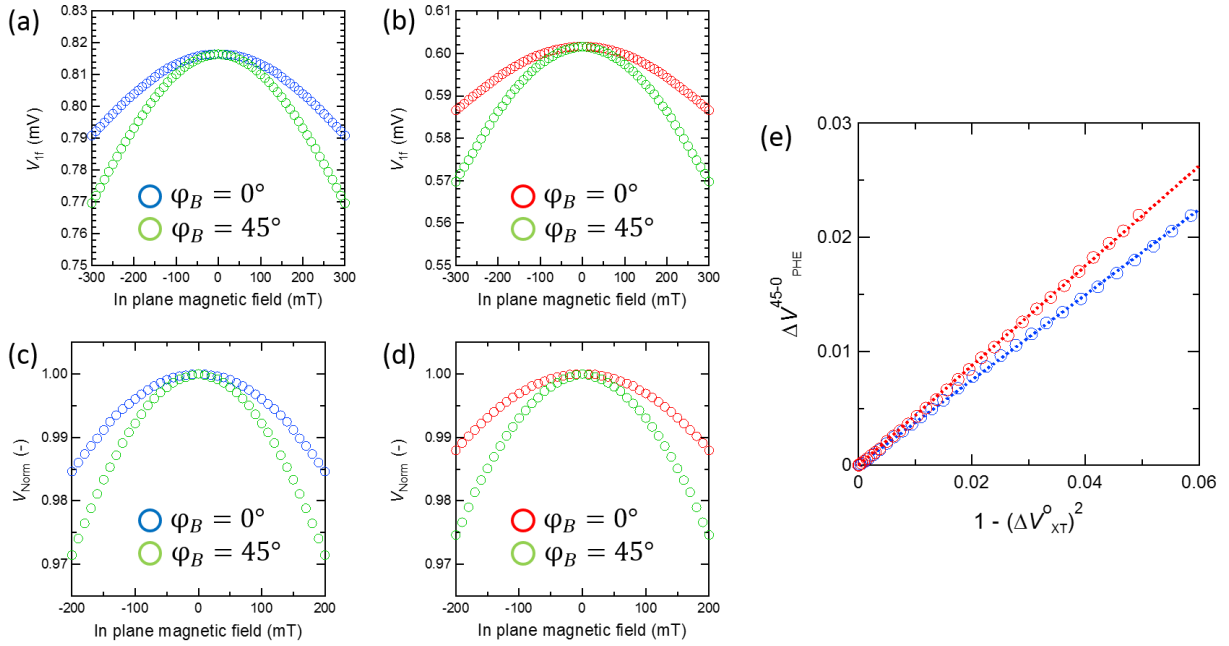


Fig.7. 5  $V_f(\varphi_B = 0^\circ)$  and  $V_f(\varphi_B = 45^\circ)$  in (a)Co/Pt(P) and (b)Co/Pt(S) at applied voltage of 3V. (c) and (d) represents the normalized  $V_f(\varphi_B = 0^\circ)$  and  $V_f(\varphi_B = 45^\circ)$  in (a)Co/Pt(P) and (b)Co/Pt(S), respectively. (e) Plot of  $\Delta V_{PHE}^{45-0}$  versus  $1 - (V_{XY}^0)^2$  for Co/Pt(P) (blue dots) and Co/Pt(S) (red dots). The slope of linear fit (dashed line) corresponds to  $R_P / R_A$  ratio  $\xi$ .

存在することを表し、PHEを考慮せずにはSOTの評価が信頼できないと考えられる。なお、7.1.1においてCo/Pt(S)の $V_f$ に非対称の成分が観測されたと記した。しかしPHEは $\sin(2\varphi)$ に依存することから面内磁場に対して必ず対称になることから、本節では対称成分だけを取り出しPHEの評価を行った。7.3節で説明する高磁場におけるハーモニク測定法から、より直接的にPHEを見積もる方法を紹介する。結果だけを述べると、そこで得られた $\xi$ と本節で得られた $\xi$ がほぼ同じ値を示しており、導き方や対称成分だけを取り入れる方法は正しいと判断される。

### 7.1.3 Evaluation of $B_{SL}$ and $B_{FL}$

前節で求めた $\xi$ を取り組んだ場合、補正される $B_{SL}$ と $B_{FL}$ は次式となる[1,2]。

$$\Delta B_{SL} = -\frac{(B_{SL} + 2\xi B_{FL})}{1 - 4\xi^2} \quad (7.10)$$

$$\Delta B_{FL} = -\frac{(B_{FL} + 2\xi B_{SL})}{1 - 4\xi^2} \quad (7.11)$$

上式における $\Delta B_{SL}$ 及び $\Delta B_{FL}$ が真のSOTを表すことになる。7.1.1と7.1.2で得られた



結果から $\Delta B_{SL}$ や $\Delta B_{FL}$ をまとめた結果を Fig.7.6 に示す。また $\Delta B_{SL}$ と $\Delta B_{FL}$ を印加した電流密度に対して計算することから、SOT の効率(SOT efficiency:  $\chi$ )として評価することができる。すなわち電流密度を $J_c$ とすると、 $\chi_{SL(FL)}$ は $\Delta B_{SL(FL)}/J_c$ となり、その結果を Table 7.1 にまとめる。

Co/Pt(P)の系では先行研究が既に行われており、 $\chi_{SL}$ は 1.7-5.1 (mT per  $10^{11}\text{Am}^{-2}$ )、 $\chi_{FL}$ は 3.2 (mT per  $10^{11}\text{Am}^{-2}$ )として報告されている[3,7]。本研究で求めた $\chi_{SL}$ 及び $\chi_{FL}$ はそれぞれ 1.7 と 1.3 であり、比較してみるとやや低い値ではあるが。しかし本試料で用いた Co 膜厚が 1.05nm であり先行研究(0.6nm)より厚く、FM の膜厚が厚いほど同じトルクでもその効率が下がることを考慮すると[8,9]、 $\chi$ が低く検出されることは妥当であると考えられる。その上 Co/Pt(S)の $\chi_{SL}$ 及び $\chi_{FL}$ をみると、Co/Pt(P)と比べ 2.5-3 倍ほど増加していることがわかる。ただし、Co/Pt(S)の場合 $V_f$ の測定で観測された非対称成分の寄与がある可能性があるため、本章の後半で述べる高磁場におけるハーモニク測定法の結果や SOT による磁化反転の結果と合わせて改めて議論する必要がある。

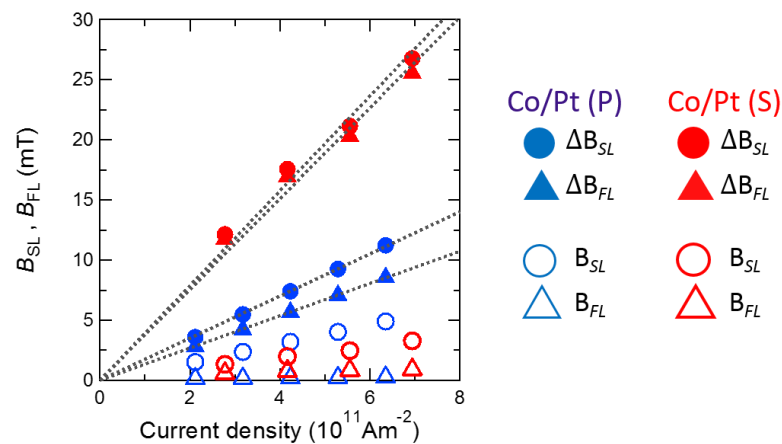


Fig.7. 6 Evaluated  $\Delta B_{SL}$  and  $\Delta B_{FL}$  in Co/Pt(P)(blue dots) and Co/Pt(S)(red dots). Closed dots and open dots represent the SOT after and before PHE correctionm respectively. The slope of linear fit of each SOT indicate the SOT efficiency  $\chi$ .

Table.7. 1 SOT efficiency  $\chi$  in Co/Pt(P) and Co/Pt(S). (Unit: mT/( $10^{11}\text{Am}^{-2}$ ))

	$\chi_{SL}$	$\chi_{FL}$
Co/Pt(P)	1.7	1.3
Co/Pt(S)	3.9	3.7

## 7.2 Asymmetric contribution to anomalous Hall effect in Co/Pt(S)

7.1 節で行ったハーモニク測定法で、Co/Pt(S)の場合 $V_f$ の測定において磁場の符号に対して非対称成分を持つホール電圧が観測された。更にこの非対称成分は磁場の方向によって変化しており、Co/Pt(P)では殆ど観測されなかったことから Pt の結晶性に起因している可能性がある。この信号は従来知られていた AHE(Eq.(7.3))では説明できず、その物理によっては SOT に影響を及ぼす可能性がある。従って本節では $V_f$ の磁場依存性や結晶方位依存性を行い、起源や本質について詳しく調べる。

### 7.2.1 $\varphi_B$ dependence

Fig.7.3 や Fig.7.4 で示されている結果から面内磁場の方向を $\varphi_B = 0^\circ$ から $\varphi_B = 90^\circ$ に変更すると Co/Pt(P)では同様な $V_f$ が得られたが、Co/Pt(S)では異なる結果が得られた。その依存性をより明確にするために、まずここでは面内磁場方向 $\varphi_B$ に対する $V_f$ の依存性を調べた。その概略図を Fig.7.7(a)に示す。本実験では $\theta_B = 0^\circ$ で $\varphi_B$ を $0^\circ$ から $180^\circ$ まで $15^\circ$ のステップで $V_f$ の測定を行った。なので 7.1 章で行った $V_f$ の測定と基本的に同様であり、 $\varphi_B$ を体系的に変化する形となる。その結果が Fig.7.7(b)及び(c)に載せられている。Co/Pt(P)の場合、 $V_f$ の振幅には変化があるが、全体的に非対称性は殆ど得られなかった。 $\varphi_B$ による振幅の変化はPHEから起因していると考えられる。それに対し、Co/Pt(S)では $V_f$ の振幅の変化と共に、非対称成分が観測されていることがわかる。更に、この非対称成分は $\varphi_B$ より変化しており、符号も変わっているような振る舞いを示している。ここで得られた結果をより定量的に評価するために、 $V_f$ を対称成分 $\Delta V_S$ と非対称成分 $\Delta V_A$ に分離した。分け方に関しては、6.1.2 の Eq.(6.6)から Eq.(6.8)に渡って用いた手法と同様であるためここでは省略する。 $V_f$ を $\Delta V_S$ と $\Delta V_A$ に分離した例を Fig.7.8 (a)-(c)に載せておく。本測定では磁場の最大値として $\pm 300\text{mT}$ でスイープを行った。従って $\Delta V_S = V_S(0\text{mT}) - V_S(300\text{mT})$ となり、 $\Delta V_A = V_A(300\text{mT}) - V_S(0\text{mT})$ として定義される。

以上の方法を全ての $V_f(\varphi_B)$ に当てはめ、評価された $\Delta V_S$ 及び $\Delta V_A$ をプロットすると Fig.7.8 (d)-(e)のような結果となる。Co/Pt(P)では予想された通り $\Delta V_A$ は非常に小さい値が得られた。一見  $\sin \varphi$ に近い依存性を有するように見えるが、シグナルの大きさから考えると $\theta$ 方向に対する装置と試料のミスアライメントから起因したと考えられる。また $\Delta V_S$ の場合は非常に顕著な  $\sin 2\varphi$ の依存性を示しており、PHE から得られることに間違いはない。

次に Co/Pt(S)の結果を考える。 $\Delta V_S$ は Co/Pt(P)と同様に  $\sin 2\varphi$ の依存性が得られ、PHE から起因されたと考えられる。しかし $\Delta V_S$ とほぼ等しい振幅として $\Delta V_A$ が観測された。Co/Pt(P)で考えたようなミスアライメントを原因としては、 $\Delta V_A$ のシグナルが大きいために、別の起源を考える必要がある。Co/Pt(P)との比較から推測すると結晶性による付加的

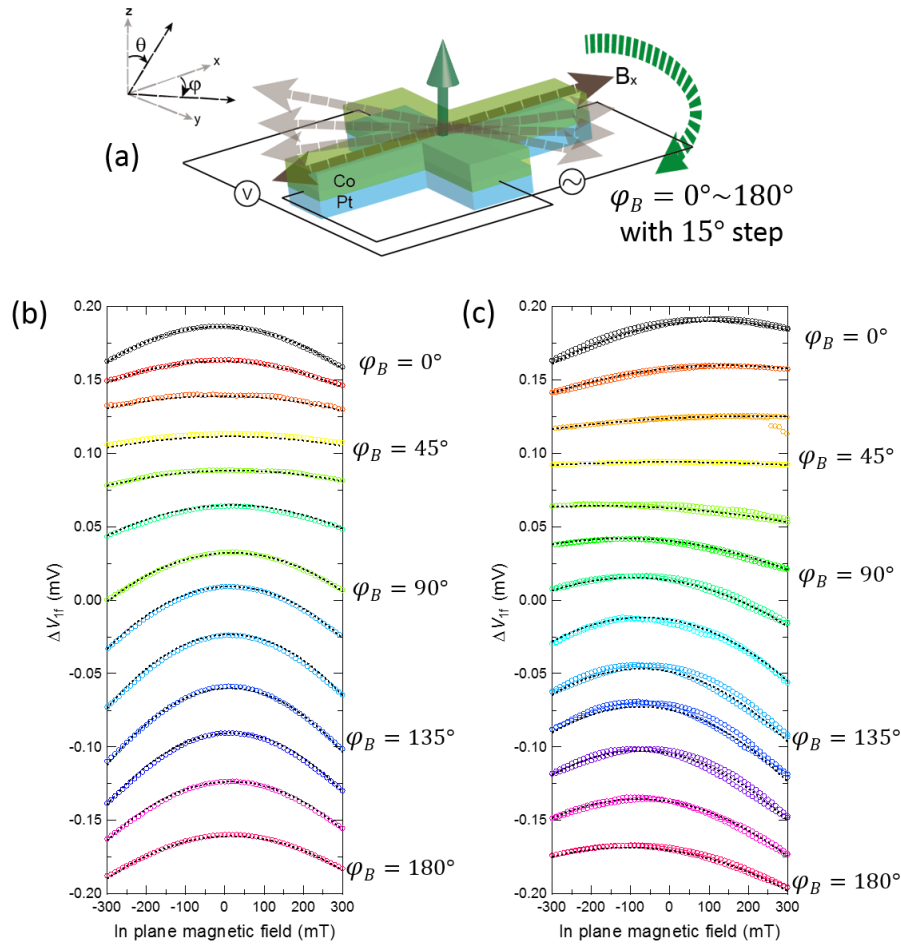


Fig.7. 7 (a) Schematic for  $\varphi_B$  dependence of  $V_f$  measurement. (b) and (c) indicates the systematic results of  $\varphi_B$  dependence of  $V_f$  for (b)Co/Pt(P) and Co/Pt(S).

なホール効果である可能性が高い。また $\varphi_B$ に対して位相がずれた  $\sin \varphi$  (もしくは  $\cos \varphi$ ) の依存性を示している。2005 年に、GaAs(113)基板上にエピタキシャル成長された  $\text{Fe}_3\text{Si}$  の PHE の研究で結晶構造から起因する非対称成分を持つ PHE が発表されており [10]、 $\sin 2\varphi$  の PHE に加えて  $\cos \varphi$  及び  $\cos^3 \varphi$  の依存性を有するという報告があった。この結果と関連づけて考えると、本実験系においてエピタキシャル成長された Co/Pt 構造から起因するホール効果が表れたと予想できる。これからは表記の簡便性のためにこのホール効果を crystal Hall effect (CHE, 仮称) と書くことにする。また面内磁場の方向に対して  $\sin \varphi$  の依存性を示すことから、CHE はある面内方向を基準として磁気異方性のように働いていると予想される。つまり印加される面内磁場が CHE の方向と等しい場合は最大の非対称性を起こすが、直交している場合は  $V_f$  が対称として検出される。

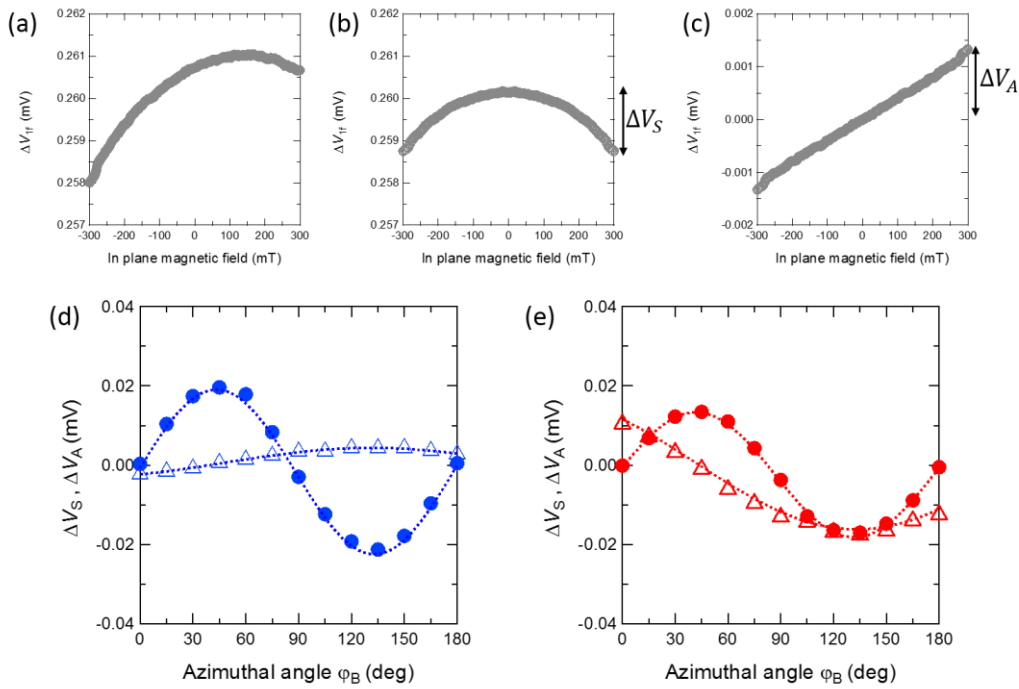


Fig.7. 8 (a)-(c): Example of separation of  $\Delta V_S$  and  $\Delta V_A$ . (a) indicates measured  $V_f (= \Delta V_S + \Delta V_A)$  and (b) and (c) correspond to its symmetric component  $\Delta V_S$  and asymmetric component  $\Delta V_A$ . (d) and (e) shows  $\Delta V_S$  (closed circle) and  $\Delta V_A$  (open triangle) obtained in (d) Co/Pt(P) and (e) Co/Pt(S), respectively.

### 7.2.2 $\theta_B$ dependence

前節で推論したことから、CHE によってある面内方向に磁気異方性のような可能性が挙げられた。本節ではその過程を確かめるために Co/Pt(S)において $\varphi_B = 0^\circ$ として固定し、 $\theta_B$ を $60^\circ$ から $90^\circ$ まで $5^\circ$ のステップで変えながら $V_f$ の測定を行った(Fig.7.9(b))。 $\theta_B$ が傾いて形で磁場を印加すると、ある磁場 $B_{ext}$ を印加した際の面直の磁場成分と面内磁場成分はそれぞれ $B_{ext}\cos(\theta_B)$ と $B_{ext}\sin(\theta_B)$ となる。CHEにより作られる有効的磁場が $-B_{CHE}$ とすると、その逆方向で $B_{ext}\sin(\theta_B)$ 印加したところで $V_f$ のピークが現れると予想される。この磁場の値を Shifted  $B_{max}$  と定義する。 $\theta_B$ が $60^\circ$ から $90^\circ$ まで徐々に増加していくと、 $\sin(\theta_B)$ の関数に従い Shifted  $B_{max}$  は下がる傾向を示すと期待される。

以上の工夫を基に、 $V_f$ の $\theta_B$ 依存性の実験を行った。Fig.7.9(a)のように、 $\theta_B$ が小さい場合は $B_{ext}\cos(\theta_B)$ が大きいため保持力が小さく、 $\theta_B$ が上がるにつれ保持力は増加していく。Shifted  $B_{max}$  に注目すると(Fig.7.9(c))、赤矢印で記されているように $\theta_B$ が上がることに従い徐々に減少して行くことが明らかに観測された。Shifted  $B_{max}$  の変化を定量的に見るために $\theta_B$ に対しプロットした結果が Fig.7.9(d)となる。ここで $\sin(\theta_B)$ によって計算される面内磁場成分を載せると、得られた Shifted  $B_{max}$  の変化と非常に一致していることがわかる。

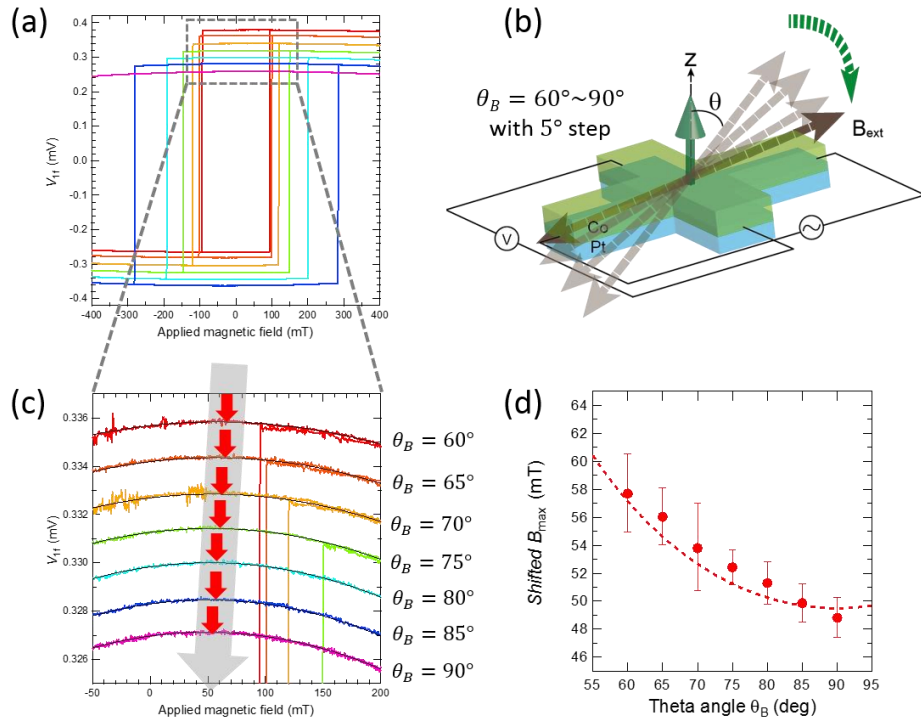


Fig.7.9 (a) Measured  $V_f$  as a function of  $\theta_B$ . The loop on top corresponds to  $V_f(\theta_B = 60^\circ)$  and gradually  $\theta_B$  increases with  $5^\circ$ . Each result is offset for easy understanding. (b) Schematic for  $\theta_B$  dependence of  $V_f$  measurement. Here,  $\varphi_B = 0$ . (c) Zoom-in result of gray dashed box in (a) to highlight the shifted  $B$  in each  $\theta_B$  measurement. The thick red arrow indicates the shifted  $B_{max}$  at each loop. (d) Plot of the shifted  $B$  versus  $\theta_B$ . The red dashed line corresponds to the fitted line showing the included in plane  $B_{ext}$  component by applying the applied magnetic field to  $\theta_B$  direction.

従って、本実験から Co/Pt(S)で観測される CHE が有効的な面内磁場として働くことが明らかになった。それでは、CHE が結晶構造による効果であることを確かめるために、結晶方位による CHE の測定を行う。

### 7.2.3 Current path dependence

前節までの結果から  $V_f$  に見られる非対称成分 CHE は Co/Pt(S)で明らかに観測され、  
 1. 面内磁場方向  $\varphi_B$  に大きく依存する 2.  $\theta_B$  により Shifted  $B_{max}$  が変化する ことが分かった。従って CHE は Co/Pt(S)が持つエピタキシャル構造から起因されたと推測できる。本節では結晶構造による効果であることを確かめるために、Co/Pt(P)や Co/Pt(S)において電流の印加方向が異なる素子を作成し  $V_f$  の測定を行った。

Fig.7.10(a)にあるデバイスの写真のように、ホールバーの構造は同様であるがそれ

ぞれの素子は $30^\circ$ の間隔として曲がっている形でつながるように設計した。また全体の素子を $15^\circ$ ずらすことによって、最終的に電流が流れる方向が $15^\circ$ の間隔で $0^\circ$ から $180^\circ$ まで変化する素子が作製された。従ってある面において結晶構造が揃っていれば、電流印加方向によって異なるポテンシャルを感じるようになる。Co/Pt(P)の場合 Pt は MgO(100)上に成長され、Co/Pt(S)では MgO(111)上に成長されたため各試料に対応する面構造や電流印加方向を Fig.7.10(b)や Fig.7.10(c)の隣に挿入した。また磁場の印加方向は常に電流印加方向と平行になるように設定した。

Fig.7.10(b)に示された結果のように、Co/Pt(P)では素子による違いが殆ど観測されないことがわかる。第 4 章の結晶成長で調べたように、Co/Pt(P)では Pt が多結晶として成長されたために電流方向を変化しても電子が感じるポテンシャルの違いは余りないことがその理由として考えられる。しかし Co/Pt(S)では測定する素子によって現れる非対称成分が非常に変化する結果が得られた。磁場の印加方向が常に電流と平行であることを考えると、CHE の大きさや振幅が電流方向だけに依存して大変変化していることが明確にわかる。以上の結果から、Co/Pt(S)で観測される CHE は Co/Pt(S)が持つエピタキシャル構造から起因し、また面内における結晶構造によって制御できることが得られた。

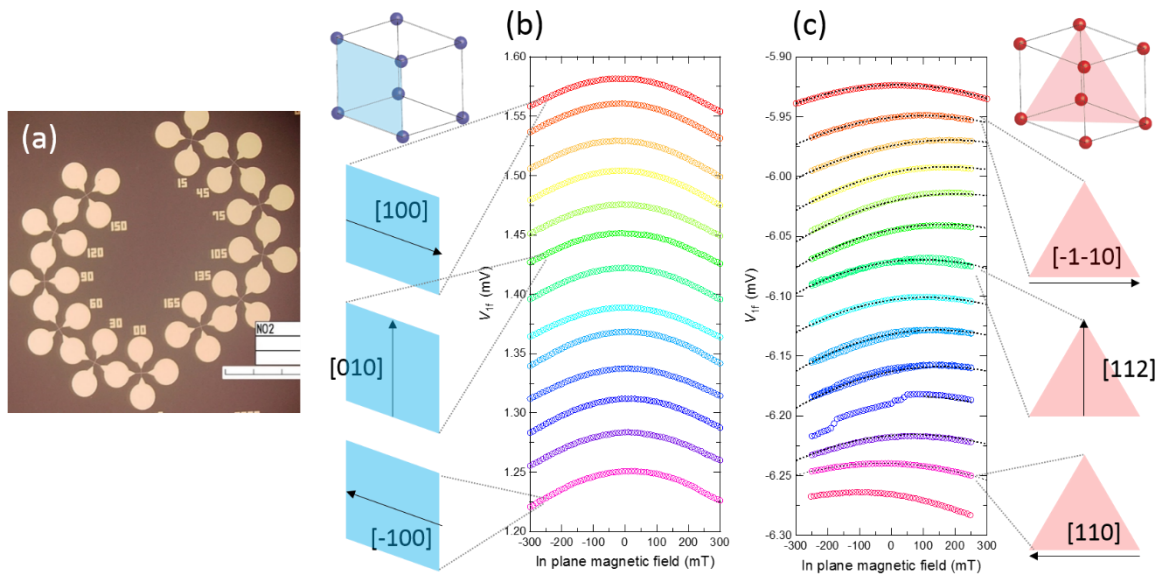


Fig.7. 10 (a) Example of devices which have different current paths. (b) and (c) indicates the systematic results of current path dependence of  $V_f$  for (b)Co/Pt(P) and Co/Pt(S). Illustrations of (100) plane for Co/Pt(P) and (111) plane for Co/Pt(S) as well as current injection line in each plane are introduced for easy understanding.



### 7.3 Harmonic measurement at high magnetic field

本節では高磁場におけるハーモニック測定の結果について述べる。5.2節で紹介したように、磁場を面内から $\theta$ 方向に少し傾いた方向に印加し、ハーモニック測定を行うことで $\theta_M$ のより広い範囲におけるSOTを評価することが可能となる。本節における実験系の概略図をFig.7.11に示す。本実験では $\theta_B = 80^\circ$ に設定し、 $\pm 3\text{T}$ まで磁場を印加した。また $\varphi_B = 0^\circ, 90^\circ$ の条件でハーモニック測定を行い、 $B_{SL}$ と $B_{FL}$ を定量的に評価した。なお、高磁場における測定では1つの電流密度で測定した $V_f$ 及び $V_{2f}$ からSOTの評価が可能であることから、電圧ではなく抵抗( $R_f, R_{2f}$ )の単位として表記する。

5.2節における導出から、 $R_f, R_{2f}$ は以下のように表される。

$$R_f = R_A \cos\theta_0 + R_P \sin^2\theta_0 \sin(2\varphi_0) \quad (7.12)$$

$$R_{2f} = (R_A \cos\theta_0 - 2R_P \cos\theta_0 \sin(2\varphi_0) \left. \frac{d\cos\theta}{dB_{ext}} \right|_{\theta_0} \frac{1}{\sin(\theta_B - \theta_M)} B_{Total,\theta} + R_P \sin^2\theta_0 \frac{2\cos 2\varphi}{B_{ext} \sin \theta_B} B_{Total,\varphi} \quad (7.13)$$

上式において $\theta_0, \varphi_0$ は $\mathbf{M}$ の平衡状態における角である( $\theta(= \theta_0 + \Delta\theta)$ ,  $\varphi(= \varphi_0 + \Delta\varphi)$ )。またPMAを有する $\mathbf{M}$ では $\varphi = \varphi_B$ となり、 $R_f$ から $\theta_M$ の情報が直接的に得られる。

$$R_A \frac{d\cos\theta}{dB_{ext}} = \frac{dR_f}{dB_{ext}} \quad (7.14)$$

従って $R_f$ から得られる $\theta$ 及び $\varphi$ の情報を $R_{2f}$ に取り入れるることによって $B_{Total,\theta}$ と $B_{Total,\varphi}$ が求まり、Table.5.1の関係によって $B_{SL}$ と $B_{FL}$ が算出できる。

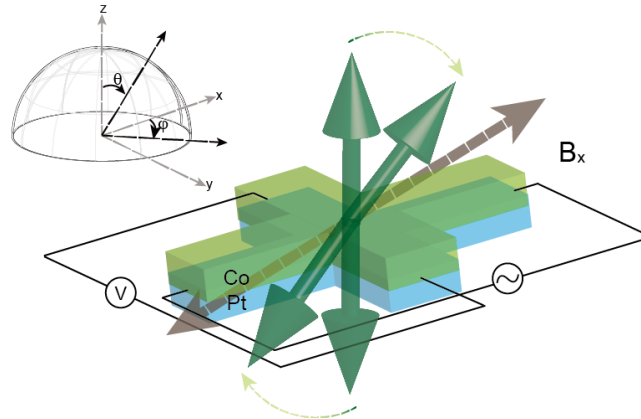


Fig.7. 11 Schematic for Harmonic measurement at high magnetic field. AC current flows to x direction and  $V_H$  detects the Hall voltage(resistance). In this schematic external magnetic field is applied to  $\theta_B = 80^\circ$  of x direction( $\varphi_B = 0^\circ$ ). Same configuration of y direction( $\varphi_B = 90^\circ$ ) is also conducted depending on the torque characteristics.



### 7.3.1 $R_f$ and $\theta$ configuration

$\theta_B = 80^\circ$ で高磁場を印加しながら $R_f$ を測定すると、単磁区構造を保ちながら $\mathbf{M}$ が磁場に対して変化するのでFig.7.12(a),(d)のような結果が得られる。また $\varphi_B = 0^\circ, 90^\circ$ の条件ではPHEの寄与がなくなるためAHEだけを考慮することができる。 $M_Z +$ と $M_Z -$ の状態はそれぞれ $\theta = 0^\circ, \theta = 180^\circ$ に対応するので、 $R_f$ の結果を $R_A$ で規格化することで $\cos\theta$ の情報が得られる(Eq.(7.12))。更に、 $\sin\theta$ 及び $\sin(\theta_B - \theta)$ まで容易に計算できることがわかる。またEq.7.13をみると $R_{2f}$ の計算に $\mathbf{B}$ に対する $\mathbf{M}$ の変化( $dR_f/dB$ )が必要であり、 $R_f$ を一階微分することで簡単に求められる。上記に関する結果をFig.7.12にまとめた。なお、磁化反転が生じる領域(ヒステリシスがでる区間)は $\theta$ の変化が激しく、また単磁区構造になっていると見なせないため省略し計算を行った。本計算結果をもとにEq.(7.13)の計算を行うことができる。

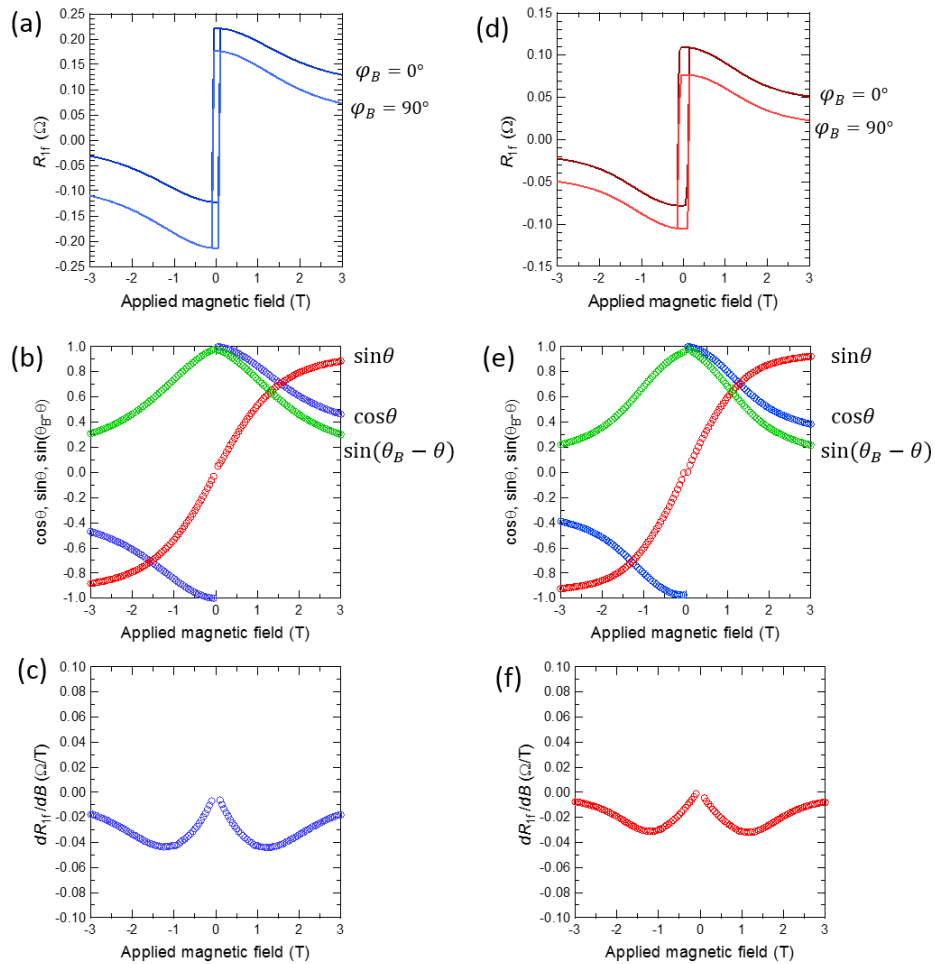


Fig.7. 12 (a), (d): Obtained  $R_f$  at  $\varphi_B = 0^\circ$  and  $R_f$  at  $\varphi_B = 90^\circ$  (b), (e): Derived  $\cos\theta$  (blue dots),  $\sin\theta$  (red dots) and  $\sin(\theta_B - \theta)$  (green dots). (c), (f): Calculated first derivative of  $R_f$  ( $dR_f/dB$ ). (a-c) is the results for Co/Pt(P) and (d-f) correspond to Co/Pt(S), respectively.

### 7.3.2 $R_{2f}$ and separation of thermal and SOT contributions

高磁場における $R_f$ の結果では AHE だけに関わるため $\varphi_B (= 0^\circ, 90^\circ)$ の方向によらず同様な信号が得られたが、 $R_{2f}$ では SOT が寄与するため $\varphi_B$ によって異なる信号が得られる。すなわち、 $\varphi_B = 0^\circ$ の場合は $B_{SL}$ が主に寄与し、 $\mathbf{M} \times \mathbf{y} \times \mathbf{M}$ の特性から奇関数に近い振る舞いを示す。それに対し、 $\varphi_B = 90^\circ$ の場合は $B_{FL} (\propto \mathbf{y} \times \mathbf{M})$ の寄与が強いため偶関数のようなシグナルが得られる(Fig.7.13)。

しかしここで求められた $R_{2f}$ には熱磁気効果による異常ネルンスト効果(anomalous Nernst effect:ANE)が含まれており、真の SOT による $R_{2f}$ を取り出すためには ANE から生じる $R_{2f}$ を除去する必要がある[11,12]。HM/FM のバイレイヤー構造を持つホールバーで起きる ANE は熱が生じる方向により 2 つが考えられる。まず電流がチャネルを通していれる際に、チャネル幅による電流密度から生じる ANE がある。これは電流方向( $//x$ )に沿って熱勾配 $\nabla T_x$ が生成され、 $\mathbf{M}$ の $z$ 成分によって2次のハーモニック成分が得られる( $R_{2f,\nabla T_x}$ )。次に、基板と金属層の間に熱伝導度の差が存在すると垂直方向( $//z$ )で $\nabla T_z$ が生じ、この場合は $\mathbf{M}$ の $x$ 成分が2次のハーモニック成分を作ることになる( $R_{2f,\nabla T_z}$ )。以上の内容を式として表すと、

$$R_{2f,total} = R_{2f,SOT} + R_{2f,\nabla T_x} + R_{2f,\nabla T_z} \quad (7.15)$$

$$R_{2f,\nabla T_x} = \frac{R_{ANE}}{I} \nabla T_x \cdot M_z = \frac{R_{ANE}}{I} \nabla T_x \cdot \cos\theta \quad (7.16)$$

$$R_{2f,\nabla T_z} = \frac{R_{ANE}}{I} \nabla T_z \cdot M_x = \frac{R_{ANE}}{I} \nabla T_z \cdot \sin\theta \cos\varphi \quad (7.17)$$

ここで $R_{2f,total}$ は全体の $R_{2f}$ 、 $R_{2f,SOT}$ は SOT による $R_{2f}$ を意味する。

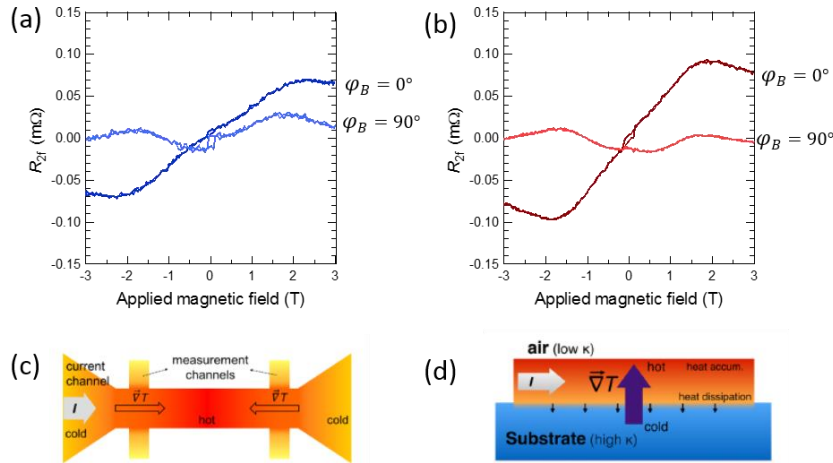


Fig.7. 13 Obtained  $R_{2f}$  at  $\varphi_B = 0^\circ$  and  $R_f$  at  $\varphi_B = 90^\circ$ . (a) for Co/Pt(P) and (b) for Co/Pt(S). In both samples,  $R_{2f}(\varphi_B = 0^\circ)$  shows odd function due to  $B_{SL}$  contribution and  $R_{2f}(\varphi_B = 90^\circ)$  behaves like even function because of  $B_{FL}$ . Schematic of (c) the current-induced in-plane thermal gradient  $\nabla T_x$  and (d) the current-induced out-of-plane thermal gradient  $\nabla T_z$ . Note that (c) and (d) is taken from [11].

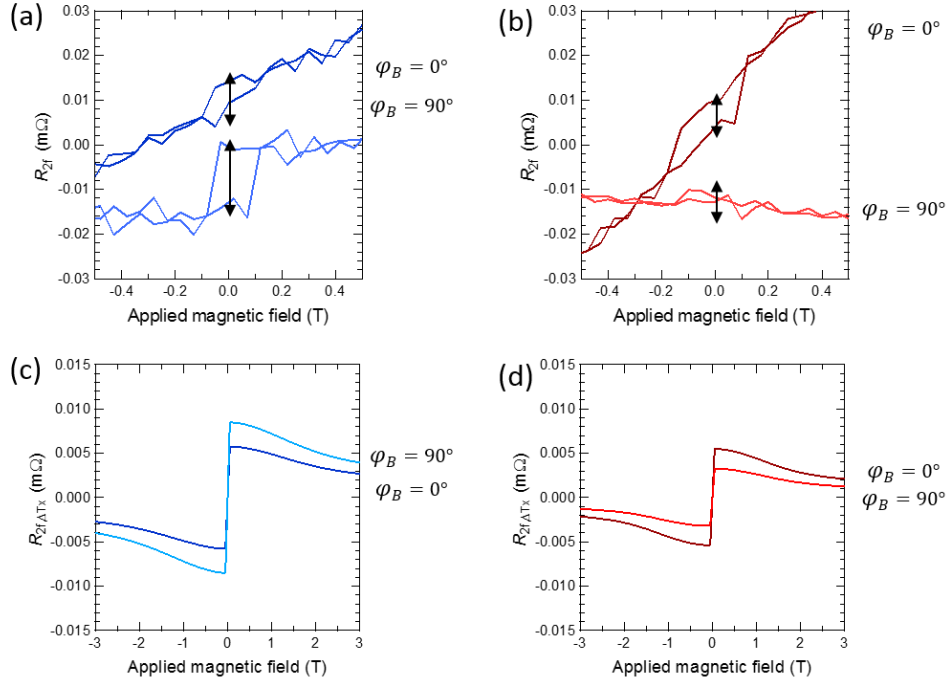


Fig.7. 14 Detail of  $R_{2f, \nabla T x}$  contribution (a) for Co/Pt(P) and (b) for Co/Pt(S). Arrows near zeron magnetic field correspond to  $2R_{2f, \nabla T x}$ . Reonstrcuted  $R_{2f, \nabla T x}$  in entire magnetic field is shown in (c) for Co/Pt(P) and (d) for Co/Pt(S).

- Magneto-thermal correction of  $\nabla T x$

$\nabla T x$  による  $R_{2f, \nabla T x}$  は Eq.(7.16) のように記述され、 $M_z$  に比例する。 $R_{2f, total}$  におけるゼロ磁場付近では  $M_z$  が最大値をとり、 $M_x$  は無視できることから、 $R_{2f, \nabla T x}$  の寄与はないと考えられる。更に、 $R_{2f, SOT}$  の場合もゼロ磁場における値は  $M_z$  の符号に関係せず一致する。従って  $R_{2f, total}$  におけるゼロ磁場付近のオフセットから  $R_{2f, \nabla T x}$  を導き出すことができる。各試料における  $R_{2f, \nabla T x}$  の導出を Fig.7.14 に示しておく。ゼロ磁場付近で生じるヒステリシスから  $M_z + \rightarrow M_z -$  のスweepと  $M_z - \rightarrow M_z +$  のスweepが存在し、ゼロ磁場ではそれぞれ  $M_z +$  と  $M_z -$  による  $R_{2f, \nabla T x}$  が残ることになる。故に、 $R_{2f, \nabla T x}(M_z +) - R_{2f, \nabla T x}(M_z -) = 2R_{2f, \nabla T x}$  となることから、 $R_{2f, \nabla T x}$  が求められる。

- Magneto-thermal correction of  $\nabla T z$

$\nabla T z$  の場合は、 $M_x$  に比例することから (Eq.(7.17))、 $M_z$  を可能な限り少なくすると  $R_{2f, \nabla T z}$  だけを導き出すことができる。従って完全な面内方向 ( $\theta_B = 90^\circ$ ) に磁場を印加する必要があり、 $M_z$  が無視できる系において  $R_{2f}$  は以下のように記述されると報告されている [12]。

$$R_{2f} = \left[ \left( R_A \frac{B_{SL}}{B_{ext}} + I \nabla T z \right) \cos \varphi + 2R_P (2\cos^3 \varphi - \cos \varphi) \frac{B_{FL} + B_{Oe}}{B_{ext}} \right] \quad (7.18)$$

PMA を有する系においては $\varphi_B = \varphi$ のような関係となるため、 $\varphi_B = 45^\circ$ で磁場を印加すると

$$R_{2f} = \left[ \left( R_A \frac{B_{SL}}{B_{ext}} + IVTz \right) \cos \frac{\pi}{4} \right] \quad (7.19)$$

となり、 $R_{2f,VTz}$ 及び $B_{SL}$ による $R_{2f,SOT}$ だけが寄与する関係となる。ここで $B_{SL}$ は  $\mathbf{M}$  と対応関係になるべきであり、 $B_{ext}$ が面内に向けられた場合は $B_k$  の大きさほど有効的に減少される。このことを考慮し、Eq.(7.19)を書き直すと

$$R_{2f} = \left[ \left( R_A \frac{B_{SL}}{(B_{ext} - B_k)} + \frac{R_{ANE}}{I} VTz \right) \cos \frac{\pi}{4} \right] \quad (7.20)$$

上式のような関係となる。従って、 $R_{2f}$ を $(B_{ext} - B_k)$ に対してプロットすることで傾きからは $\theta \approx 90^\circ$ における $B_{SL}$ が、y切片からは $R_{2f,VTz}$ が求まる。

$\theta_B = 90^\circ$ ,  $\varphi_B = 45^\circ$ に磁場を印加した時の $R_f, R_{2f}$ の測定結果を Fig.7.15 に示す。Fig.7.15(a), (b)をみると、PHE により $M_z +$ と $M_z -$ における $R_f$ の振る舞いが異なっているが、3T以上磁場を印加すると $R_f$ がほぼなくなることが観測され、 $M_z \approx 0$ であると考えられる。この領域において得られた $R_{2f}$ に注目してみると、Fig.7.15(c),(d)のような結果が得られ、 $\theta$ が磁場をかけることにつれ $90^\circ$ に近づくほど $R_{2f}$ が減少していることがわかる。 $B_k$ は単磁区状態が保たれる領域では

$$B_k = B_{ext} \left( \frac{\sin \theta_B}{\sin \theta} - \frac{\cos \theta_B}{\cos \theta} \right) \quad (7.21)$$

のような関係が成り立ち、 $R_f$ の結果が容易に計算することができ、両方の試料において $B_k \approx 1.1$  Tとなる結果が得られた。以上の情報を基に Eq.(7.20)の関係をプロットしてみると Fig.7.15(g),(h)のような結果となり、綺麗な一次関数が得られる。各試料において傾き及び y 切片を求めると、Co/Pt(P)では $B_{SL}(\theta \approx 90^\circ) \approx 2.6$  mT、 $R_{2f,VTz} = -0.027$  m $\Omega$ となり、Co/Pt(S)では $B_{SL}(\theta \approx 90^\circ) \approx 5.1$  mT、 $R_{2f,VTz} = -0.050$  m $\Omega$ となる結果が得られた。以上の結果を $\theta_B = 80^\circ$ で測定した磁場範囲に拡張すると Fig.7.15(i),(j)となる。ここで $R_{2f,VTz}$ では $M_x$ だけが寄与するため、 $\varphi_B = 90^\circ$ の場合は $R_{2f,VTz}$ は存在しない。

以上の課程から得られた ANE の寄与を除くと、SOT のみの寄与からなる $R_{2f,SOT}$ が導かれ、その結果を Fig.7.16 に示す。

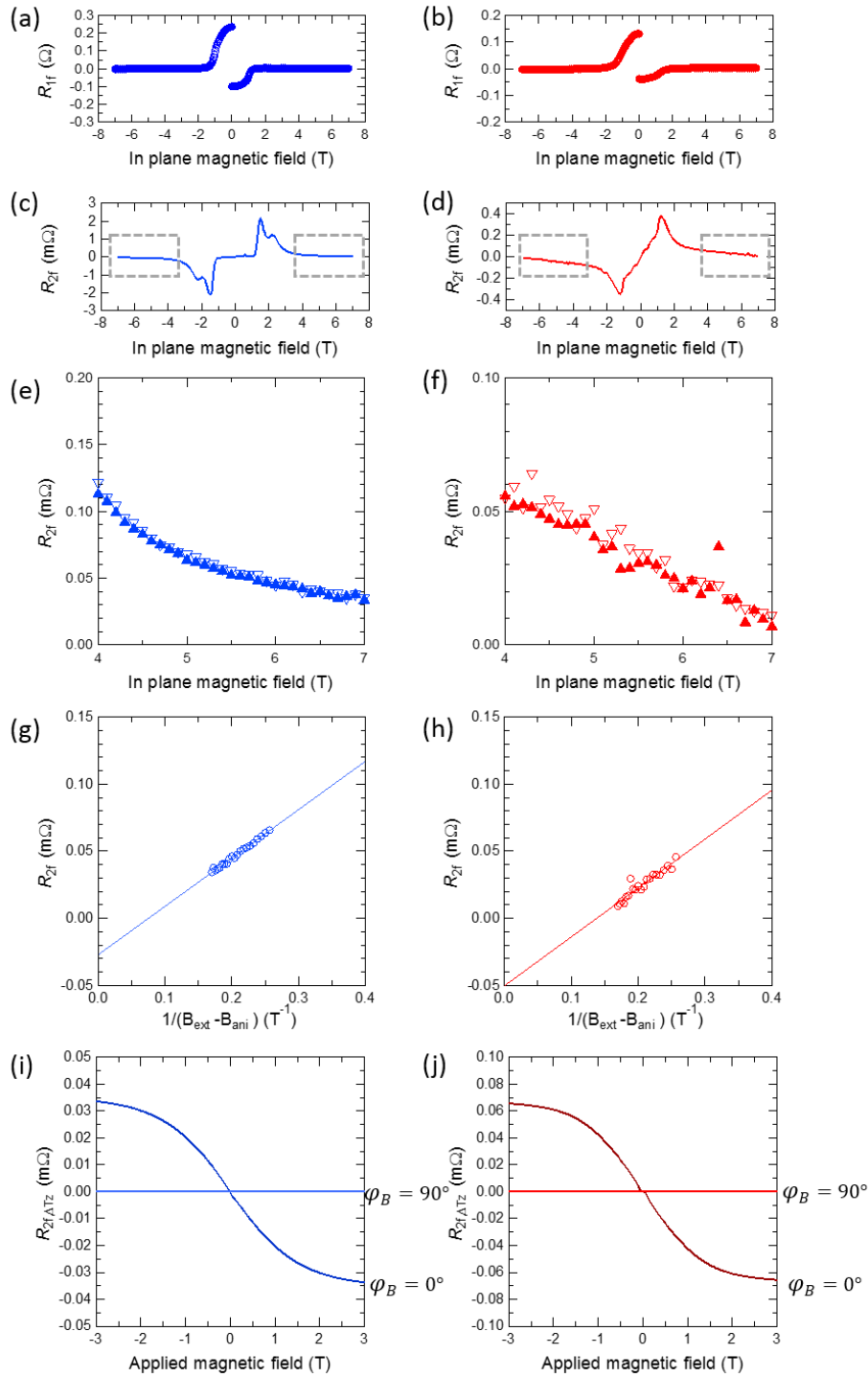


Fig.7. 15 Obtained  $R_f$  (a-b) and  $R_{2f}$  (c-d) when magnetic field is applied to direction of  $\theta_B = 90^\circ$ ,  $\varphi_B = 45^\circ$ . (e-f) Detail of  $R_{2f}$  in high magnetic field region (5T to 7T), corresponding to the dashed rectangles in (c) and (d). Filled-in triangle and open reversed triangle indicates to positive magnetic field region and negative magnetic field region, respectively. +4T to +7T contribution. (g-h) Plot of  $R_{2f}$  as a function of  $(B_{ext} - B_k)$ . Reconstructed  $R_{2f,VTZ}$  in entire magnetic field ( $\theta_B = 80^\circ$ ). (a),(c),(e),(g),(h) is the results for Co/Pt(P) and (b),(d),(f),(h),(j) those for Co/Pt(S).

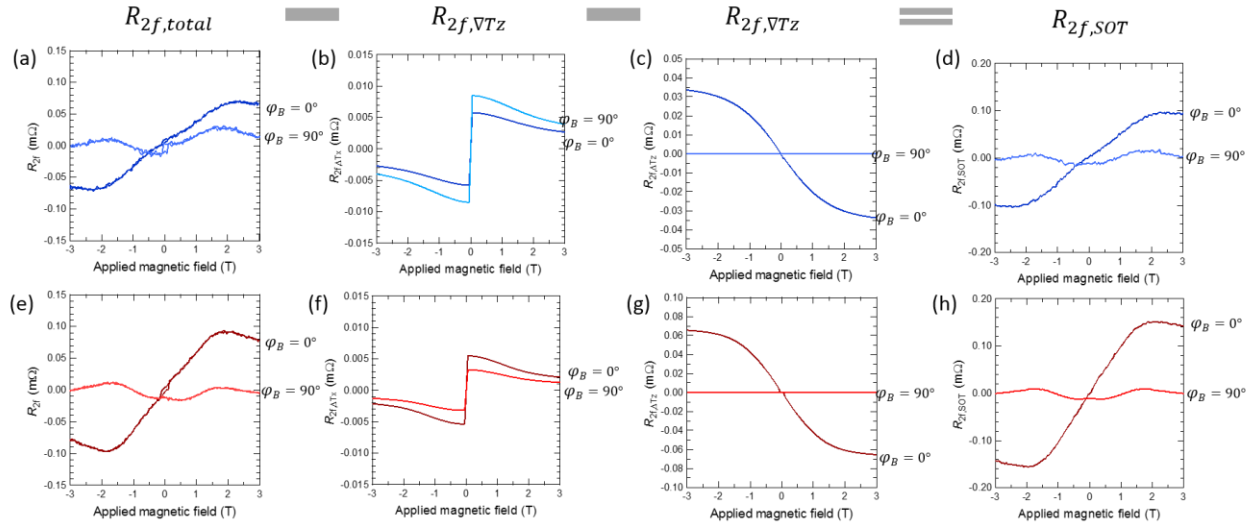


Fig.7. 16 Separation of the thermal and SOT contributions in  $R_{2f}$ . (a),(e)  $R_{2f,total}$ . (b),(f)  $R_{2f,VTx}$ . (c),(g)  $R_{2f,VTz}$ . (d),(g)  $R_{2f,SOT} = R_{2f,total} - R_{2f,VTx} - R_{2f,VTz}$ . (a-d) is the results for Co/Pt(P) and (e-h) correspond to Co/Pt(S), respectively.

### 7.3.3 Planar Hall effect correction

ここでは PHE の寄与を表す  $R_p$  の導出を行う。7.1.2 で行った方法は低磁場を印加した場合の  $R_p$  の求め方を紹介したが、高磁場を印加できる系であると  $R_p$  をより直接的に測定することができる。全体の  $R_f$  は Eq.(7.12)のように表され、 $\cos\theta \approx 0$  になるように高磁場を印加すると、 $R_p \sin^2\theta_0 \sin(2\varphi_0)$  だけが残ることが容易にわかる。従って  $\theta \approx 90^\circ$  となる高磁場で  $\varphi_B$  の依存性を測定すると、 $R_f$  は  $R_p$  を係数として  $\sin(2\varphi)$  の関数を示すと考えられる。Fig. 7.17 に 7T を印加した際の  $\varphi_B$  による  $R_f$  の結果を示す。Fig. 7.15 における結果から 7T は  $\cos\theta \approx 0$  を作る十分な磁場であると考えられ、両方の試料において明らかに  $\sin(2\varphi)$  が得られた。その最大値は  $R_p$  に相当するので、 $\xi (= R_p / R_A)$  を求めると  $\xi(\text{Co/Pt(P)}) \approx 0.34$ 、 $\xi(\text{Co/Pt(S)}) \approx 0.46$  となる。この結果は 7.1.2 から導いた値とほぼ一致しており、Co/Pt(S) において強い PHE を示すことが確認できる。また本測定結果からは殆ど非対称成分が見られないことから、7.2 節で議論した CHE は  $\theta \approx 0^\circ$  の環境で影響を及ぼすと考えられる。

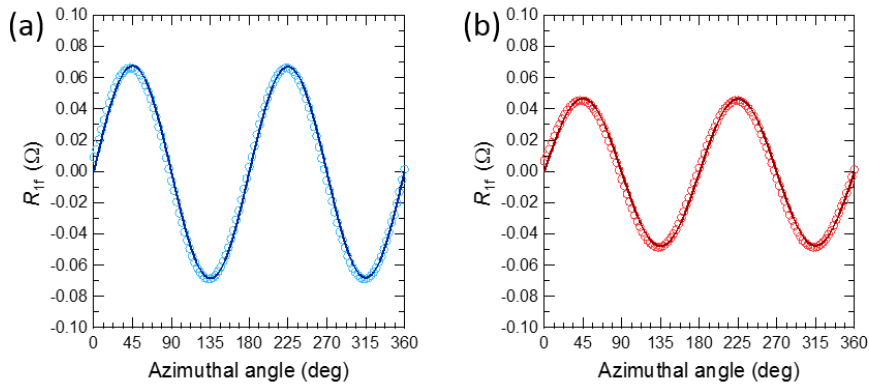


Fig.7. 17 Obtained  $R_f$  as a function of  $\varphi_B$ . Blue dots and red dots correspond to (a) Co/Pt(P) and (b) Co/Pt(S). In each result, dark colored guide line is introduced.

### 7.3.4 Derivation of $B_{SL}$ and $B_{FL}$

以上まで求めた情報を用いると、Eq.(7.13)に関わる全てのパラメータが揃い、 $B_{Total,\theta}$ と $B_{Total,\varphi}$ が導出できる。ただし、一つの $R_{2f,SOT}$ に対し、 $B_{Total,\theta}$ と $B_{Total,\varphi}$ の二つの変数に関わっているため簡単な連立方程式の形では求めることが難しい。従って本研究では回帰分析法(recursive fitting)を用いた。その手順を説明すると、

1. まず $R_p = 0$ と仮定する。この条件では $R_{2f} = (R_A \cos\theta_0 \frac{d\cos\theta}{dB_{ext}} \frac{1}{\sin(\theta_B - \theta_M)}) B_{Total,\theta}$ の関係となる。従って $R_{2f,SOT}(\varphi_B = 90^\circ)$ における $B_{Total,\theta}^0(\varphi_B = 90^\circ)$ と $B_{Total,\varphi}^0(\varphi_B = 90^\circ)$ が容易に求める。
2. 次に、 $R_p$ に実験値を代入し、 $R_{2f,SOT}(\varphi_B = 90^\circ)$ において $B_{Total,\theta}^1(\varphi_B = 90^\circ)$ を出す。またこの値と Table 5.1 の関係から $B_{Total,\varphi}^1(\varphi_B = 0^\circ)$ が得られる。
3.  $B_{Total,\varphi}^1(\varphi_B = 0^\circ)$ を用い $R_{2f,SOT}(\varphi_B = 0^\circ)$ における $B_{Total,\theta}^1(\varphi_B = 0^\circ)$ を計算する。
4. Step 2 と Step 3 を繰り返し、収束するときの $B_{Total,\theta}^n$ 及び $B_{Total,\varphi}^n$ を求める。

上記の分析法によって求められた $B_{SL}$ と $B_{FL}$ の結果を Fig.7.18 に示す。Fig.7.18(a),(b), (d),(e)のように繰り返す回数  $n$  を増やすほど $B_{SL}$ や $B_{FL}$ は収束し、5 回程度で一定の値を示すことがわかる。また求められた $B_{SL}$ 及び $B_{FL}$ を Eq.(7.13)に当てはめ、 $R_{2f,SOT}$ の測定結果と比べることで $B_{SL}$ 及び $B_{FL}$ を確かめることができる。Fig.7.18 (c),(f)のように、今回得られた $B_{SL}$ 及び $B_{FL}$ は実験結果と比較してみると全体の磁場範囲で一致していることがわかる。

以上のフィッティングから求められた Co/Pt(P)と Co/Pt(S)における $B_{SL}$ 及び $B_{FL}$ を Fig.7.19 に示す。まず Co/Pt(P)においては $B_{SL} = 1.45 + 0.1\sin^2\theta + 1.45\sin^4\theta$ ,  $B_{FL} = \cos\theta(0.80 + 0.63\sin^2\theta + 0.70\sin^4\theta)$ のような結果が得られた。 $B_{FL}$ は $B_{SL}$ との比較のためグラフ上には $B_{FL}/\cos\theta$ として記す。その結果を 7.1 の低磁場におけるハーモニック測定から得られた $B_{SL}(\theta \approx 0^\circ)$ ,  $B_{FL}(\theta \approx 0^\circ)$ 及び 7.3.2 で求めた $B_{SL}(\theta \approx 90^\circ)$ と比べてみると、10%の誤差範囲以内で互いに一致している。従って本研究で行った SOT 評価法は信頼できると考えられる。しかし、Co/Pt(S)の場合は $B_{SL} = 5.87 + 0.1\sin^2\theta + 1.93\sin^4\theta$ ,



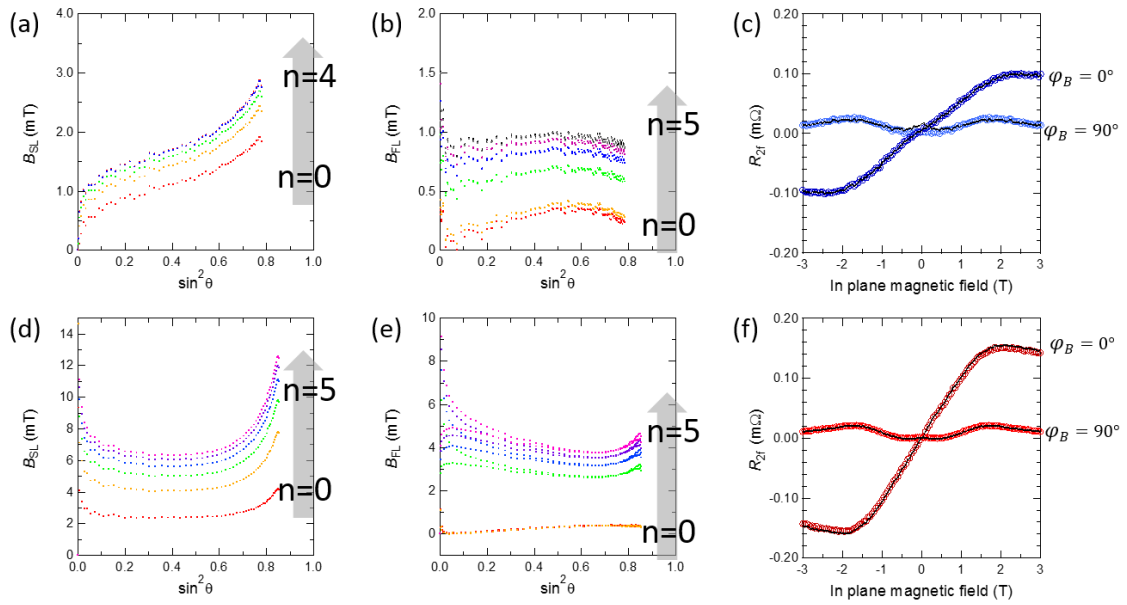


Fig.7. 18 Recursive procedure to evaluate  $B_{Total,\theta}$  and  $B_{Total,\varphi}$ . (a) and (d) shows the procedures of  $B_{SL}$ . (b) and (e) indicates those of  $B_{FL}$ . (c) and (f) is comparison between reconstructed  $R_{2f,SOT}$  by evaluated SOT(black line) and obtained  $R_{2f,SOT}$  (open dots). (a-c) is the results for Co/Pt(P) and (d-f) correspond to Co/Pt(S), respectively.

$B_{FL} = \cos\theta(4.92 + 0.1\sin^2\theta + 2.74\sin^4\theta)$ として見積もられ、Fig.7.19(b)で見れるように低磁場におけるハーモニク測定から得られた値及び 7.3.2 で求めた $B_{SL}(\theta \approx 90^\circ)$ と大幅にずれていることがわかる。高磁場におけるハーモニク測定から得られた SOT が全体的に過剰評価されていると考えられる。この原因としては 7.2 節で観測した CHE の寄与が考慮されていないためであると考えられる。CHE によって低磁場における  $\mathbf{M}$  の振る舞いに変化するのであれば、それに従い $\theta$ 及び $\varphi$ の情報も変わるはずである。故に、Eq.(7.12)及びEq.(7.13)に CHE の寄与を取り組み、改めて SOT を評価する必要性が挙げられる。

### 7.3.5 Consideration of crystal Hall effect

7.2 節で行った実験結果から、CHE は面内方向に異方性として作用し、その値は結晶構造によって異なることが分かった。また 7.3.3 で行った高磁場における $\varphi_B$ 依存性から、 $\theta \approx 90^\circ$ の時は CHE が殆ど影響を及ぼさないと考えられる。従って $\theta$ が $0^\circ \rightarrow 90^\circ$ で CHE が減少し、面内方向では  $\sin \varphi$ の依存性を持つことを考慮すると、Eq.(7.12)は CHE の項を取り組み以下のように書き換えることができる。

$$R_f = R_A \cos\theta_0 + R_P \sin^2\theta_0 \sin(2\varphi_0) + R_{CHE} \sin 2\theta_0 \sin(\varphi_0) \quad (7.22)$$

ここで $R_{CHE}$ は CHE による係数である。

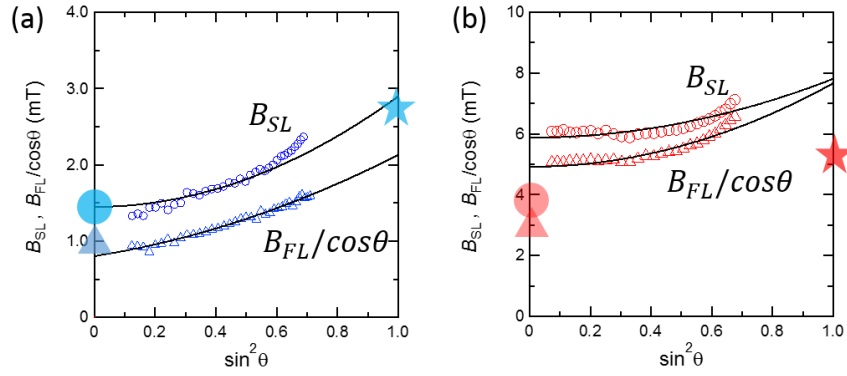


Fig.7. 19 Evaluated  $B_{SL}$  (open circle) and  $B_{FL}/\cos\theta$  (open triangle) from recursive fitting procedure. Filled circle and filled triangle indicates  $B_{SL}$  and  $B_{FL}$  obtained by low field harmonic measurement. Filled star shows  $B_{SL}(\theta \approx 90^\circ)$  evaluated magneto-thermal correction. Blue dots and red dots correspond to (a) Co/Pt(P) and (b) Co/Pt(S), respectively. In each result, black line is introduced for the estimation.

Eq.(7.12)を基に 5.2 節で行った低磁場における $R_{1f}$ をもう一度計算してみると

$$R_f \approx R_A \left( 1 - \frac{1}{2} \left( \frac{B_{ext}}{B_K} \right)^2 \right) + 2R_{CHE} \frac{B_{ext} \sin\varphi_0}{B_K} \quad (7.23)$$

となり、低磁場で得られる $R_f$ の非対称成分の傾きから $R_{CHE}$ を導出できる (Fig.7.20)。本試料で求められた $R_{CHE} \approx 4.6\text{m}\Omega$ であり、 $R_A$ と比べると $R_{CHE}/R_A \approx 0.046$ となる結果が得られた。

また高磁場における $R_{2f}$ の展開を繰り返すと以下の関係にたどり着く。

$$R_{2f} = R_{2f} = I \left( R_A \cos\theta_0 - 2R_P \cos\theta_0 \sin(2\varphi_0) - R_{CHE} \frac{2\cos 2\theta_0}{\cos\theta_0} \right) \frac{d\cos\theta_M}{dI} \Big|_{\theta_0} + IR_P \sin^2\theta_0 \frac{d\sin 2\varphi_M}{dI} \Big|_{\varphi_0} + IR_{CHE} \sin 2\theta_0 \frac{d\sin\varphi_M}{dI} \Big|_{\varphi_0} \quad (7.24)$$

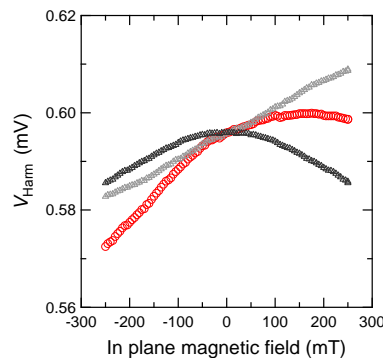


Fig.7. 20 Evaluation of  $R_{CHE}$  in Co/Pt(S) from  $R_f$ . Red circle, black circle and gray circle indicates raw data, symmetric component and asymmetric component of  $R_{1f}$ , respectively. From the slope of asymmetric component,  $R_{CHE}$  could be obtained.

$$\left. \frac{d\sin\varphi_M}{dI} \right|_{\varphi_0} = \frac{\cos\varphi_M}{B_{\text{ext}}} \frac{b_\varphi}{\sin\theta_B} \quad (7.25)$$

であることから、

$$\begin{aligned} R_{2f} = & I(R_A \cos\theta_0 - 2R_P \cos\theta_0 \sin(2\varphi_0) - R_{\text{CHE}} \frac{2\cos 2\theta_0}{\cos\theta_0}) \left. \frac{d\cos\theta_M}{dB_{\text{ext}}} \right|_{\theta_0} \frac{1}{\sin(\theta_B - \theta_M)} b_\theta \\ & + IR_P \sin^2\theta_0 \frac{2\cos 2\varphi_M}{B_{\text{ext}} \sin\theta_B} b_\varphi + IR_{\text{CHE}} \sin 2\theta_0 \frac{\cos\varphi_M}{B_{\text{ext}}} \frac{b_\varphi}{\sin\theta_B} \end{aligned} \quad (7.26)$$

以上の CHE を考慮した  $R_f$  及び  $R_{2f}$  から Co/Pt(S)において新たに  $B_{SL}(\text{w/CHE})$  と  $B_{FL}(\text{w/CHE})$  を評価した結果を Fig.7.21 に示す。見積もられた  $B_{SL}(\text{w/CHE})$  と  $B_{FL}(\text{w/CHE})$  は全体的に減少され、特に低磁場側において急激に抑えられることがわかる。本結果も  $B_{SL}(\theta \approx 0^\circ)$  と  $B_{FL}(\theta \approx 0^\circ)$  とはずれているが、これは Co/Pt(S)における大きい PHE から起因した可能性が高い。つまり、ほぼ 0.5 に近い  $R_P/R_A (\approx 0.46)$  が Eq.(7.1)及び Eq.(7.2)において SOT を過剰評価したと考えられる。以上のことは 7.4 節で述べる SOT による磁化反転の結果から明らかにわかる。それに対し、 $B_{SL}(\theta \approx 90^\circ)$  とは誤差範囲内で一致していることから、CHE を考慮した SOT の評価が妥当であると考えられる。本結果からは特に  $B_{SL}(\text{w/CHE})$  と  $B_{FL}(\text{w/CHE})$  を Eq.(5.80)及び Eq.(5.81)のような形式で表さないことにする。その理由としては、 $R_{\text{CHE}}$  によって低磁場側の値が非常に左右されることから単純に  $\sin^2\theta$  の関数としては記述できないと考えられるためである。逆に考えると、 $R_{\text{CHE}}$  によって SOT が変化することを意味する。実際  $R_{\text{CHE}}$  は電流の印加方向によって異なる結果が得られたことから、結晶方位による SOT の制御の可能性が挙げられ、デバイスへの応用面として非常に興味深いことである。

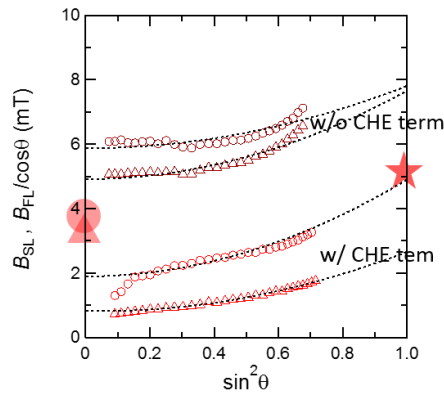


Fig.7. 21 Evaluated  $B_{SL}$  (open circle) and  $B_{FL}/\cos\theta$  (open triangle) by considering CHE term. Dark red circle and triangle indicates the evaluated SOT without including CHE term and red circle and triangle indicates the evaluated SOT with considering CHE term. Filled circle and filled triangle indicates  $B_{SL}(\theta \approx 0^\circ)$  and  $B_{FL}(\theta \approx 0^\circ)$  obtained by low field harmonic measurement. Filled star shows  $B_{SL}(\theta \approx 90^\circ)$  evaluated magneto-thermal correction. respectively. In each result, black dashed guide line is introduced.

## 7.4 Current induced magnetization switching by spin orbit torque

HM/FM バイレイヤー構造において HM から得られる SOT は有効磁場として働くことから、従来の LLG 方程式に SOT の項を取り入れると下記のようになる<sup>3</sup>。

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times (\mathbf{B}_{\text{ext}} + \mathbf{B}_{\text{FL}}(\mathbf{y} \times \mathbf{M}) + \mathbf{B}_{\text{SL}}(\mathbf{M} \times \mathbf{y} \times \mathbf{M})) + \alpha \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \quad (7.27)$$

すなわち、外部磁場 $\mathbf{B}_{\text{ext}}$ やダンピング定数 $\alpha$ だけではなく $B_{\text{SL}}$ や $B_{\text{FL}}$ も磁化のダイナミクスに大変影響を及ぼすことになる。また $B_{\text{SL}}$ や $B_{\text{FL}}$ は印加電流に比例し増加することから、SOT を用いると磁化反転を観測することができる[13-21]。 $\mathbf{B}_{\text{ext}}//x$ における Eq.(7.27)の外積をたどってみると、 $\mathbf{B}_{\text{FL}}$ の場合 $\partial \mathbf{M} / \partial t$ が $\varphi$ の方向に作用するように働く。それに対し、 $\mathbf{B}_{\text{SL}}$ では $\theta$ 方向に作用し磁化反転により直接的に関わる。従って電流方向( $\mathbf{I}/x$ )に同じ方向で $\mathbf{B}_{\text{ext}}(\mathbf{B}_x)$ を印加し、電流値をスイープすることで磁化反転を観測することができ、磁化反転が生じる電流値から $B_{\text{SL}}$ を見積もることができる。

本節では Co/Pt(P)と Co/Pt(S)における磁化反転の測定を行い、7.3 節で求めた SOT を直接的に比べると共に、CHE を考慮した評価法の妥当性を確かめる。それから Co/Pt(S)において結晶方位に依存した磁化反転を観測し、CHE のよる SOT の制御の可能性について考察する。

### 7.4.1 Switching diagram in Co/Pt(P) and Co/Pt(S)

Fig.7.22 に $B_x$ を+200mT及び+400mT印加した際の磁化反転の結果を示す。正の電流において $M_z \rightarrow M_z +$ の磁化反転が起き、それから電流を下げ負の電流になると今度は $M_z + \rightarrow M_z -$ の磁化反転生じ、ヒステリシスループのような結果が得られることがわかる。Fig.7.22(a),(c)から容易にわかるように、 $B_x$ が強いほど磁化反転に必要な電流値は減少する。このことは磁化困難軸に磁場をかけることで $M_z$ 成分が減少し、磁化反転がよりしやすくなるためである。ここで磁化反転が起きる際の $M_z = 0$ に相当する電流を閾値電流(critical current) $I_c$ と定義すると、 $I_c$ から SOT の大きさを比べることができる。つまり $I_c$ が低い領域で磁化反転が起きるほど強い $B_{\text{SL}}$ を有することになる。本実験に用いた Co/Pt(P)と Co/Pt(S)は両方とも $B_k \approx 1.1 \text{ T}$ であるため、得られた $I_c$ から直接 $B_{\text{SL}}$ を比較することができる。Fig.7.22(a),(b)及びFig.7.22(c),(d)の結果を見ると、Co/Pt(P)より Co/Pt(S)でより大きい $I_c$ において磁化反転が起きることから、Co/Pt(P)でより強い $B_{\text{SL}}$ が存在していると考えられる。現在は 2 つの磁場だけで各々の磁化反転の実験を行ったが、 $B_x$ を変えながら体系的に測定すると Fig.7.23 に示す磁化反転のダイアグラムが得られる。より定量性を見るために $I_c$ を閾値電流密度(critical current density) $J_c$ に置き換えると、Fig.7.23(a)と(b)の比較からわかるように低磁場領域では Co/Pt(P)の $J_c$ が Co/Pt(S)の $J_c$ より小さいことがわかる。Co/Pt(P)では正の $J_c$ と負の $J_c$ の絶対値がほぼ同じ値を

<sup>3</sup> 電流を x 方向に流した場合の記述である。

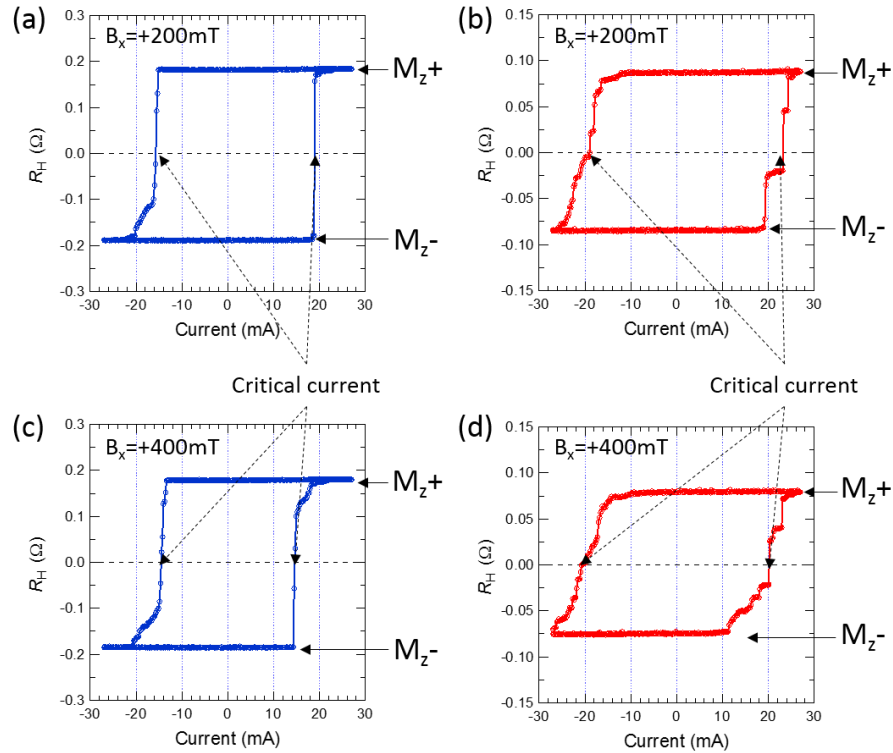


Fig.7. 22 Hall resistance  $R_H$  as a function of DC current pulse at (a),(b)  $B_x = 200 \text{ mT}$  and (c),(d)  $B_x = 400 \text{ mT}$ . Blue dots and red dots correspond to (a),(c) Co/Pt(P) and (b),(d) Co/Pt(S), respectively.

示しており、全体的に対称的なダイアグラムになっている。しかし Co/Pt(S)をみると正の  $J_c$ は低磁場側では磁場の印加と共に減少する振る舞いを示した後、徐々に磁場の値が大きくなると  $J_c$ が急激に増加する。それに対し、負の  $J_c$ では磁場の印加につれ著しく減少し、両方のダイアグラムを見ると非対称的な結果となる。Co/Pt(S)内で生じる多磁区の影響が少ない  $B_x$ が  $\pm 200 \text{ mT}$  の範囲においても同様な挙動を示す。本領域では  $\theta < 10^\circ$  となることから、低磁場側における  $B_{SL}$ が急激に変化することを表している。以上の結果は 7.3.5 で得られた CHE を考慮した SOT の値とも良く一致している。

ただし、今回用いた Co/Pt(S)では Fig.7.22(b), (d)及び Fig.7.23(b)からわかるように、多軸の影響が非常に多く、 $J_c$ を一つの値として定めることが困難である。この結果は SOT 以外の要因から得られた可能性を考慮する必要性を示す。また試料の形状による形状磁気異方性が Co/Pt(S)において大きくなっている可能性も挙げられる。従って磁化反転から得られた  $J_c$ の変調が SOT から起因していることを確かめるために、単磁区状態及び形状磁気異方性を抑えられる実験系を工夫する必要がある。これに関する実験を次節で説明する。

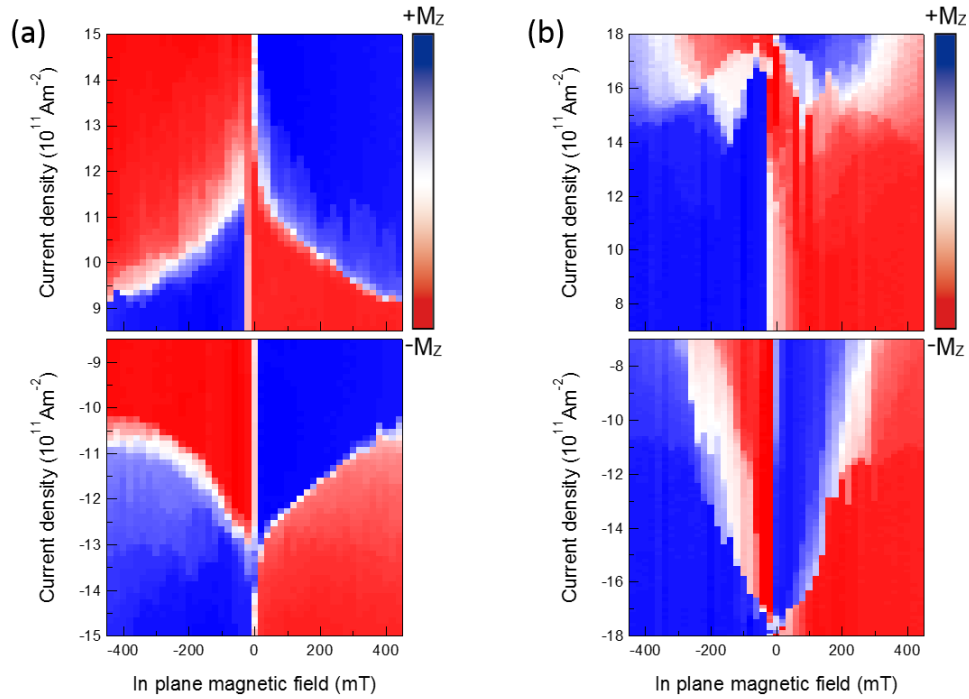


Fig.7. 23 Switching diagram in (a)Co/Pt(P) and (b)Co/Pt(S). In each diagram blue and red region corresponds to  $M_z +$  and  $M_z -$ . Therefore white region indicates the critical current density  $J_c$ .

#### 7.4.2 Switching diagram in Co/Pt(S) with dot-shaped magnetic layer

前節で取り上げられた Co/Pt(S)の磁化反転の実験における多磁区及び形状磁気異方性の影響を抑えるために、ここではドット形状の FM 層を持つ HM/FM バイレイヤー構造を作製した<sup>4</sup>。Fig.7.24(a)のように、FM 層はホールバーの領域だけにシリンダーの形として残っている。円状をしていることから形状磁気異方性をなくすることができ、またドットの半径が小さいことから多磁区の影響を抑えることが可能となる。この試料を用い電流による磁化反転の実験を行うと、磁化反転が特定の  $I_c$  において生じることが分かる(Fig.7.24(b))。この結果は Fig.7.22(b),(d)の測定結果と比較すると多磁区の影響が大変抑制されていることが明らかになる。前節と同様に、本試料において磁化反転のダイアグラムを測ってみると、Fig.7.24(c)のような結果が得られた。形状の影響で FM 層における保持力が増加されているために  $J_c$  は Fig.7.22(b)と比べ上がっているが、全体的には挙動としては大変一致している。従って、7.4.1 で得られた磁化反転の結果は SOT から起因されたと判断することができる。

<sup>4</sup> デバイス作製の詳細については、Appendix を参照されたい。

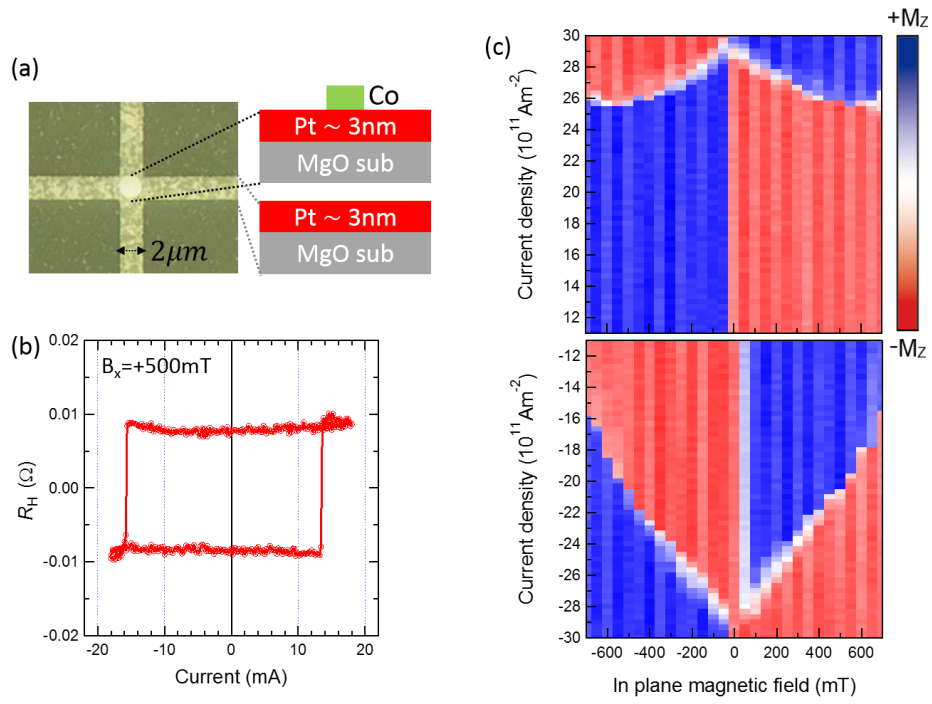


Fig.7. 24 (a) Photo and schemtaic of device with dot-shaped magnetic layer. (b) Hall resitance  $R_H$  as a funtion of DC current pulse at  $B_x = 400$  mT. (c) Switching diagram of Co/Pt(S) with with dot-shaped magnetic layer.



## 7.5 Conclusion

本章では Pt の結晶構造が異なる Co/Pt バイレイヤー構造を用い、Pt の結晶性による SOT の測定を行った。MgO 基板の結晶方位を制御することでエピタキシャル成長された Co/Pt(Co/Pt(S))と多結晶構造を持つ Co/Pt(Co/Pt(P))を成膜することができ、また低磁場及び高磁場におけるハーモニック測定法を行うことで SOT を定量的に評価した。

低磁場におけるハーモニック測定では  $\theta \approx 0^\circ$  における SOT が求められ、PHE の補正をしてあげることで Co/Pt(P)及び Co/Pt(S)の  $B_{SL}$  や  $B_{FL}$  が得られた。しかし Co/Pt(S)における  $V_f$  の測定から、磁場に対し非対称成分を持つホール電圧が観測された。この信号は従来まで知られていた AHE では説明できず、Co/Pt(P)では殆ど観測されなかったことから Pt の結晶性に起因している可能性がある。従って非対称成分の性質や起源を調べるために Co/Pt(S)において  $\varphi_B$ ,  $\theta_B$  及び結晶方位による依存性を測定した。その結果、非対称成分は面内磁場に対し  $\sin\varphi_B$  の振る舞いを示し、結晶方位に依存した面内磁気異方性として作用することがわかった。本現象は Co/Pt(S)だけで顕著に現れたことから、結晶性に起因した効果であると考えられ、本論文では CHE と称する。

次に、高磁場におけるハーモニック測定から  $\theta$  の広い領域における SOT の評価を行うと、Co/Pt(P)では低磁場におけるハーモニック測定から得られた  $B_{SL}$  や  $B_{FL}$  と一致しているが、Co/Pt(S)では過剰評価されている結果がみられた。その原因として Co/Pt(S)で観測された CHE が SOT の評価に考慮されていないことが考えられる。CHE は有効的な面内磁場成分として働くために、磁化成分は CHE によって影響を受けると容易に予想できる。従って本研究では CHE を取り組んだ SOT の評価法を構築し、それによって Co/Pt(S)における SOT が説明できることを導き出した。CHE による補正を加えると、Co/Pt(S)の  $B_{SL}$  や  $B_{FL}$  は抑制される結果が得られ、特に低磁場側ではその傾向がより顕著となる。また CHE は結晶方位に強く依存することから、エピタキシャル成長された系において結晶方位により SOT を制御できる可能性を示唆する。

最後に、ハーモニック測定から得られた結果を確かめるために、SOT による磁化反転の測定を行った。Co/Pt(P)において Co/Pt(S)と比べより小さい  $J_c$  で磁化反転が観測されたことから CHE を取り組んだ SOT の評価が妥当であると考えられる。更に、Co/Pt(S)において磁場の印加方向により  $J_c$  が大きく変わる結果が得られ、CHE によって SOT が制御できることが実証された。

本章で行った Pt の結晶性による SOT の測定から、Pt をエピタキシャル構造にすることで結晶性に起因する新たなホール効果(CHE)が実験的に導かれた。また CHE は磁化状態に影響を及ぼすことから、CHE を考慮した上で SOT を評価する必要がある、その導出方法を構築した。更に CHE は結晶方位に依存することから、SOT を結晶性により制御できる可能性が挙げられ、Co/Pt(S)における磁化反転の測定はその可能性を強く示唆している。本結果は、結晶性を利用することで SOT を変調できる新たな方法を提案しており、その定量的に評価方法を構築した研究として重要な意義を持つ。

## Reference

- [1] J. Kim, J. Sinha, M. Hayashi, M. Yamanouchi, S. Fukami, T. Suzuki, S. Mitani and H. Ohno, Nat. Mater. **12**, 240 (2013).
- [2] M. Hayashi, J. Kim, M. Yamanouchi, and H. Ohno., Phys. Rev. B, **89**, 144425d (2014).
- [3] K. Garello, I. M. Miron, C. O. Avci, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel, S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin and P. Gambardella, Nat. Nano., **8**, 587 (2013).
- [4] D. A. Thompson, *et al.*, IEEE Trans. Magn. **11**, 1039 (1975).
- [5] T. R. McGuire and R. I. Potter, IEEE Trans. Magn. **11**, 1039 (1975).
- [6] S. Woo *et al.*, Appl. Phys. Lett., **105**, 21204 (2014).
- [7] L. Liu, O.J. Lee, T.J. Gudmundsen, D.C. Ralph, and R.A. Buhrman, Phys. Rev. Lett., **109**, 096602 (2012).
- [8] C-F. Pai *et al.*, Phys. Rev. B, **92**, 064426 (2015).
- [9] A. V. Khvalkovskiy, V. Cros, D. Apalkov, V. Nikitin, M. Krounbi, K. A. Zvezdin, A. Anane, J. Grollier, and A. Fert, Phys. Rev. B **87**, 020402 (2013).
- [10] P. K. Muduli *et al.*, Phys. Rev. B, **72**, 104430 (2005).
- [11] A. Ghosh, K. Garello, C. O. Avci, M. Gabureac and P. Gambardella, Phys. Rev. A, **7**, 014004 (2017) ; its supplemental material.
- [12] C. O. Avci, K. Garello, M. Gabureac, A. Ghosh, A. Fuhrer, S. F. Alvarado, and P. Gambardella, Phys. Rev. B, **90**, 224427 (2014).
- [13] I. M. Miron *et al.*, Nat. Mater. **9**, 230 (2010); I.M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, and P. Gambardella, Nature (London) **476**, 189 (2011).
- [14] S. Yan and Y. B. Bazaliy, Phys. Rev. B, **91**, 214425 (2015).
- [15] L. Liu *et al.*, Science, **336**, 555 (2012).
- [16] T. Taniguchi *et al.*, Phys. Rev. B, **92**, 024428 (2015).
- [17] L.Liu, C.-F. Pai, D. C. Ralph, and R.A.Buhrman, Phys. Rev. Lett. **109**, 186602 (2012).
- [18] C.-F. Pai, L. Liu, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Appl. Phys. Lett. **101**, 122404 (2012).
- [19] M. Yamanouchi, L. Chen, J. Kim, M. Hayashi, H. Sato, S. Fukami, S. Ikeda, F. Matsukura, and H. Ohno, Appl. Phys. Lett. **102**, 212408 (2013).
- [20] X. Fan, J. Wu, Y. Chen, M. J. Jerry, H. Zhang, and J. Q. Xiao, Nat. Commun. **4**, 1799 (2013).
- [21] M. Cubukcu, O. Boulle, M. Drouard, K. Garello, C. O. Avci, I. M. Miron, J. Langer, B. Ocker, P. Gambardella, and G. Gaudin, Appl. Phys. Lett. **104**, 042406 (2014).

## 8. Temperature dependence of Spin orbit torque in Co/Pt(S)

第 7 章で行った Pt の結晶構造が異なる Co/Pt バイレイヤー構造の SOT の実験結果から、同様な Co/Pt 構造においても Pt の結晶性により得られる SOT は大変異なる結果が得られた。具体的には Co/Pt(S) では結晶性から起因する CHE を考慮する必要があり、その影響によって SOT が変調される結果を導くことができた。一方、第 6 章で行った結果をみると、Pt の結晶性及び膜厚によってスピン緩和メカニズムが非常に依存することが明らかになった。特に単結晶成長された Pt では従来の散乱からなる EY よりは構造反転対称性の破れによる DP のスピン緩和が強調されることが明らかになった。以上の結果をまとめてみると、スピン緩和及び SOT の両方とも Pt の結晶性に強く依存していることが容易にわかる。ただし、第 6 章のスピン緩和に関する実験は 1.6K の極低温で測定され、第 7 章の SOT についての実験は室温で行われたことから、両方のパラメータの関連性を直接的に比較することは困難である。例えば、スピン緩和も SOT も SOI から起因するパラメータとはいえ、Co/Pt(S) で得られた SOT がスピン緩和でみた DP によるものであると主張することは難しい。従って本章ではその関連性を結びつくために、Co/Pt(S) における SOT の温度依存性を調べた。まだ起源に関する議論は続けているが、従来までは  $B_{SL}$  は SHE から起きると考えられ、 $B_{FL}$  は界面における Rashba SOI が作用すると考えられてきた。スピン緩和メカニズムと関連づけてみると、おおよそ  $B_{SL}$  は EY、 $B_{FL}$  は DP と近い関係にあると予想できる。温度依存性を調べることから Co/Pt における散乱頻度を制御することが可能となるため、温度による  $B_{SL}$  と  $B_{FL}$  から SOT とスピン緩和メカニズムの関連性を観察できると考えられる。

本章で行う実験は第 7 章で行った高磁場におけるハーモニック測定と同様であるため、SOT の導出に関する詳細は省略する。また測定時間の制約上、測定温度  $T$  は 5 点 ( $T=250, 200, 150, 100, 50$  (K)) として、Co/Pt(S) に注目し実験を行ったことを記しておく。

## 8.1 Transport and magnetic property

金属系における伝導現象において温度が下がると熱による格子散乱が抑制され、それに従い  $R$  が下がる。本実験で用いた Co/Pt(S)においても同様な振る舞いが予想され、チャンネルにおける  $\rho$  の温度依存性を測定してみると、Fig.8.1(a)のような結果が得られた。また散乱頻度として表すために Eq.(6.10)に従いモメンタム散乱頻度  $\Gamma_p$  として計算した結果を Fig.8.1(b)に示す。通常金属内で観察される挙動と同様に、 $\Gamma_p$  は温度が下がることに連れ徐々に減少される結果が得られた。

次に、磁気伝導現象の温度依存性について述べる。伝導現象で強い温度依存性を示したことから、磁気伝導現象も強い温度依存性を有すると予想できる。各温度における AHE 及び PHE の結果は Fig.8.2(a),(b)のようになる。温度が下がるほど熱による揺らぎが抑制されるため保持力は増加しており、AHE から来る  $R_A$  は減少する結果が見られる。つまりホール効果に寄与する  $M_z$  が大幅に少なくなっていることを表す。高磁場における  $\varphi_B$  の依存性から PHE を測定して見ると、 $R_p$  も減少する挙動を示してはいるが、その変化は  $R_A$  より小さい(Fig.8.2(c))。  $R_p/R_A$  が温度減少につれ大幅に増加していることから、SOT の導出にも影響を及ぼすと考えられる。以上の結果を踏まえ、次節で SOT の導出を行う。

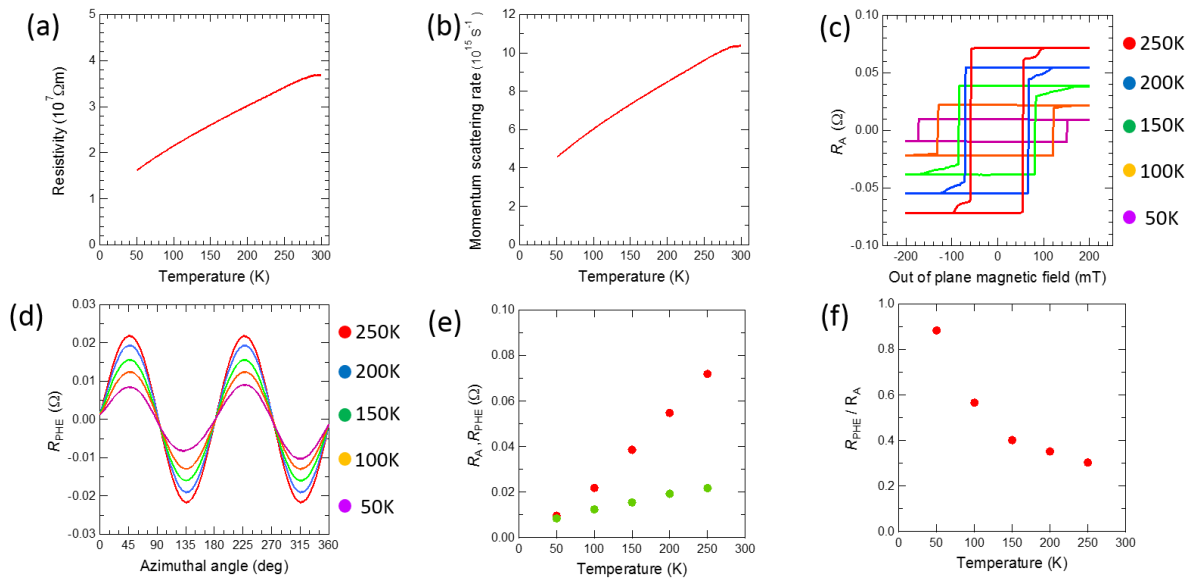


Fig.8. 1 (a) Resistivity  $\rho$  and (b) momentum scattering rate  $\Gamma_p$  as a function of  $T$ . (c) Hysteresis loop( $\theta_B = 0^\circ$ ) depending on  $T$ . The maximum value in each loop corresponds to  $R_A$  (d)  $R_p$  as a function of  $\varphi_B$  at  $B(\theta_B = 90^\circ)=7T$ . In (c) and (d), the  $T$  index is introduced next to the plot. (e) Obtained  $R_A$  and  $R_p$ , (d) ratio of  $R_p/R_A$  versus  $T$ .

## 8.2 Temperature dependence of Harmonic measurement at high magnetic field

SOT を定量的に評価するために、本章では 7.3 節で行った高磁場におけるハーモニク測定法を適用した。評価方法の詳細については、7.3 節を参照されたい。Fig.8.2(a)のように、AHEはTに対し徐々に減少されるが、その挙動から求まる $B_K$ は増加している(Eq.7.21)。従って同じ SOT であっても、Tが下がると $R_{2f}$ に与える影響は減少されると予想される。実際得られた $R_{2f}$ をみると、両方の磁場方向( $\varphi_B = 0, 90^\circ$ )において T が下がるシグナルも大幅に減少されることがわかる(Fig.8.2(c),(d))。この結果は求められた SOT に $R_A$ に対する補正を行うことで各 T における真の SOT が得られることを示唆する。Eq.(7.23-26)で行った導出を各温度における $R_f$ 及び $R_{2f}$ に適用することで求めた $B_{SL}$ と $B_{FL}/\cos\theta$ を Fig.8.3(a),(c)に示す。また得られた SOT の信頼性を表すために、Fig.8.2(c), (d)の $R_{2f}$ の結果に導かれた SOT 値から再現される $R_{2f}$ を実線で表しておく。得られた $B_{SL}$ と $B_{FL}/\cos\theta$ はTに対し依存性がないような結果を示すが、上述したように $R_A$ に対する補正を行う必要があり、下式のように規格化を行った。

$$\text{Normalized } B_{SL} = B_{SL} / \left( \frac{R_A(T)}{R_A(300K)} \right) \quad (8.1)$$

$$\text{Normalized } B_{FL}/\cos\theta = (B_{FL}/\cos\theta) / \left( \frac{R_A(T)}{R_A(300K)} \right) \quad (8.2)$$

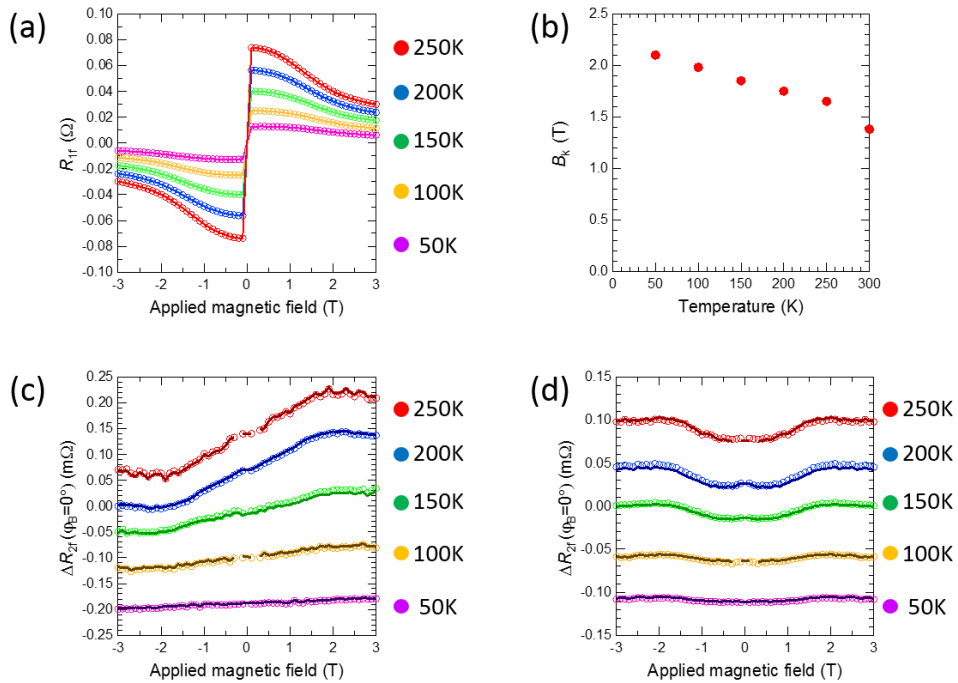


Fig.8. 2 (a)  $R_f$  as a function of  $T$ . To highlight the change of  $R_A$ , the result of half sweep is introduced. (b)  $B_K$  depending on  $T$ . Temperature dependence of (c)  $R_{2f}(\varphi_B = 0^\circ)$  (colored dots) and (d)  $R_{2f}(\varphi_B = 90^\circ)$  (colored dots). The colored line indicates the reconstructed  $R_{2f}$  by evaluated  $B_{SL}$  and  $B_{FL}/\cos\theta$ .



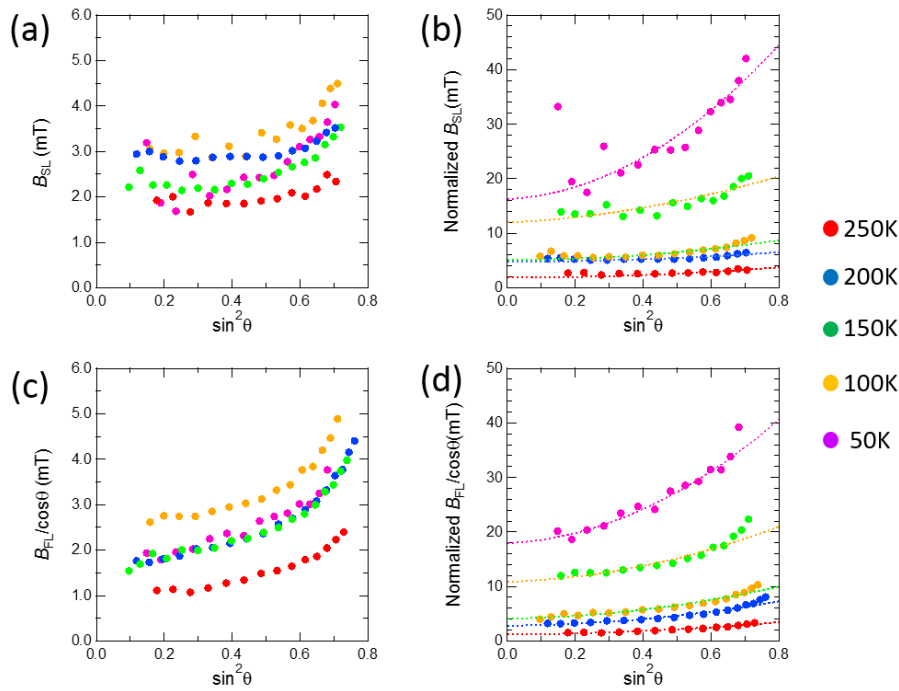


Fig.8. 3 Evaluated (a)  $B_{SL}$  and (b)  $B_{FL}/\cos\theta$  by recursive fitting procedure. (b) and (d) corresponds to normalized  $B_{SL}$  and  $B_{FL}/\cos\theta$  based on Eq.(8.1) and (8.2), respectively. In (b), (d) the colored dashed line is introduced to evaluate  $B_{SL}^0$  and  $B_{FL}^0/\cos\theta$ .

ここで  $R_A(T)$  は各  $T$  における  $R_A$ 、 $R_A(300K)$  は 300K における  $R_A$  となる。本関係に基づき、規格化を行うと Fig.8.3(b),(d) のようになる。すなわち、 $T$  の減少によって見かけ上ハーモニック測定の信号としては抑制されてしまうが、実質作用する  $B_{SL}$  と  $B_{FL}/\cos\theta$  は増加していくことを意味している。 $T$  に対する変化をより明確に見るために、 $\theta \approx 0^\circ$  における  $B_{SL}$  と  $B_{FL}/\cos\theta$  をそれぞれ  $B_{SL}^0$  と  $B_{FL}^0/\cos\theta$  と表記し、 $T$  についてプロットすると (Fig.8.4(a))、両方の SOT は  $T$  について反比例する関係を表している。つまり  $T$  が下がることで SOT は増加していく関係が得られた。本結果を Ta/CoFeB/MgO 系で行われた先行研究と比べると [1]、 $B_{FL}^0/\cos\theta$  については相似した結果と考えられるが、 $B_{SL}^0$  においても急激に減少されていくことがわかる。先行研究で行われた試料構造は多結晶であることを考えると、本結果は単結晶に起因された可能性が高い。 $B_{SL}^0$  の起源を SHE と関連づけてみると、この現象は Co/Pt(S) で生じる SHE も散乱現象だけに依存しないことを表している。更に、本結果を 8.1 節で求めた  $\Gamma_p$  に対して表すと、上記の関係が明確となる。 $B_{SL}^0$  と  $B_{FL}^0/\cos\theta$  は両方とも  $\Gamma_p$  に反比例する関係を示すことから、DP による期限が支配的に作用していると考えられる。ただし、本結果からは定性的な議論に留まってしまう。より定量的な解析を行うためには、更なる補正が必要である。ここでは  $R_A$  の  $T$  による変化だけを取り組んだが、実際変化する磁化  $M_s$  を考慮すべきである。また Co/Pt 構造では Pt 層と Co 層の各層における電気伝導度の温度依存性が異なる可能性があるため、その電流密度の差を取り入れることも重要である。最後に、第 6 章及び 7 章で行ったように、多結晶の試料 (Co/Pt(P)) においても同様な実験を繰り返し、両市量の違いをみるとより明確になると考えられる。

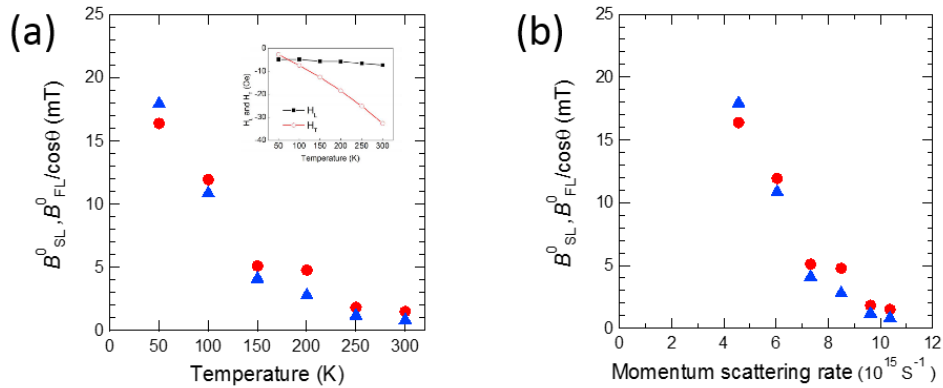


Fig.8. 4 (a) Temperature dependence of  $B_{SL}^0$  (red circle) and  $B_{FL}^0/\cos\theta$  (blue triangle). Inset of (a) is the temperature dependence of  $H_L$  and  $H_T$  in Ta/CoFeB/MgO from [1], where  $H_L$  and  $H_T$  corresponds to  $B_{SL}^0$  and  $B_{FL}^0/\cos\theta$  in this result. (b)  $B_{SL}^0$  (red circle) and  $B_{FL}^0/\cos\theta$  (blue triangle) as a function of momentum scattering rate  $\Gamma_p$ .

### 8.3 Conclusion

本章では Co/Pt(S)における SOT の温度依存性を測定することで、エピタキシャル構造から得られる SOT とスピン緩和メカニズムとの関連性について探った。

Co/Pt(S)の場合、AHE 及び PHE などの磁気伝導現象が温度により非常に変化する結果が得られた。従って各温度にてハーモニック測定から得られる SOT は磁気伝導現象の温度依存性を考慮する必要性が挙げられ、本章では 300K における AHE を基準とし SOT の規格化を行った。その結果、 $\theta \approx 0^\circ$ における  $B_{SL}$  と  $B_{FL}/\cos\theta$  は温度が下がるとともに急激に増加する振舞いを示した。スピン緩和メカニズムの評価で用いたように、 $B_{SL}$  と  $B_{FL}/\cos\theta$  を  $\Gamma_p$  に対して表すと両方の SOT とも反比例する関係を示した。故に、散乱頻度が下がることにつれて SOT は強くなる傾向になることから、Co/Pt(S)では EY よりも DP によって SOT が起因していると考えられる。以上の結果は第 6 章で得られたエピタキシャル成長された Pt におけるスピン緩和メカニズムと大変相似しているため、結晶性により SOI が強く依存し、単結晶構造にすることで内因性 SOI を強調できることを示唆する。本結果はまだ定性的な議論に留まってはいるため、より定量的な評価には精密な磁化特性の温度依存性及び更なる解析が要される。また多結晶構造を持つ Co/Pt との比較でメカニズムの違いがより明らかになると考えられる。これらに関しては、今後の課題とする。



## Reference

- [1] X.Qiu et al., Scientific Reports, **4**, 4491 (2014).

## 9. Conclusions and Outlook

金属スピントロニクスは HM が有する強い SOI は中心とし、近年急激な発展が続いている。しかし HM における SOI に関するパラメータは、同じ材料においても様々な値が報告されている。その原因として、金属における SOI を決めるメカニズムが測定環境及び試料構造に対し変化するためであると考えられる。例えば、従来までは散乱現象に外因性 SOI が支配的なメカニズムとして考えられてきたが、近年の報告ではバンド構造や界面構造に由来する内因性 SOI が存在する可能性があることが報告されている。従って金属内の SOI をもたらすメカニズムを明確に理解することで効率的な SOI のエンジニアリングが可能となり、金属スピントロニクスデバイスの実現に繋がる。

従って、本研究では金属スピントロニクスにおける基礎物理の理解と共にデバイスとしての応用可能性を提案することを目指す。まず基礎物理に関しては、スピン緩和メカニズムを調べることにより金属内の SOI の深い理解が得られることである。本論文ではエピタキシャル成長された Pt を用い、多結晶構造を持つ Pt と比較を行うことで Pt におけるスピン緩和メカニズムを明確にした。次に、基礎物理の知見を拡張し、スピントロニクスデバイスへの基盤技術を提案することを目指す。本研究では結晶性による SOT を探求した。それにより結晶方位に依存した SOT の制御可能性を導くことに成功し、金属におけるスピン制御の可能性を強く示唆する。

本論文から得られた知見をまとめると以下ようになる。

第 4 章では、MgO(111)基板上にエピタキシャル構造を持つ Pt の成長に成功した。更に、Pt のエピタキシャル成長を拡張し、MgO 基板の結晶方位を制御することで Pt の結晶性が異なる垂直磁気異方性を持つ Co/Pt の成長する手法を確立した。

第 6 章では、結晶性による Pt のスピン緩和を調べることで、金属内に生じる SOI のメカニズムを定量的に調べた。エピタキシャル成長された Pt 及び多結晶構造を持つ Pt を用い、膜厚による電気輸送測定及び量子干渉効果の測定を行うことで、スピン緩和メカニズムを導くことに成功した。本結果から、従来まで知られていた散乱による EY だけではなく DP を考慮する上で Pt のスピン緩和が説明できることが導かれた。またエピタキシャル構造にすることで EY が抑制でき、DP が強調されることが明らかになった。また DP から得られるスピン緩和を応用し、金属においてもスピン緩和を電氣的に制御することが可能であることを実証した。

第 7 章では、第 6 章で得られた結晶性によるスピン緩和メカニズムの違いを室温まで拡張するために、Pt の結晶構造が異なる Co/Pt バイレイヤー構造を用い、Pt の結晶性による SOT の測定を行った。ハーモニック測定を用い SOT を評価することで、結晶構造によって SOT は非常に依存することが明らかになった。特に、低磁場におけるハーモニック測定から、Co/Pt(S)においては磁場に対し非対称成分を持つホール電圧をもたらす CHE が存在することを観測し、結晶方位に依存した面内磁気異方性として作用することを実験的に導き出した。それから磁化成分は CHE によって影響を受ける

ことから、CHE を取り組んだ SOT の評価法を構築し、それによって Co/Pt(S)における SOT の説明に成功した。更に SOT による磁化反転の測定から、CHE を取り組んだ SOT の評価の妥当性を確かめると共に、SOT を結晶性により制御できる可能性を提示した。

第 8 章では、Co/Pt(S)における SOT の温度依存性を測定することで、エピタキシャル構造から得られる SOT とスピン緩和メカニズムとの関連性について探った。温度依存性から得られる SOT は散乱頻度が下がることにつれて SOT は強くなる傾向になることから、Co/Pt(S)では EY より DP によって SOT が起因している挙動を示した。この結果は第 6 章で得られたエピタキシャル成長された Pt におけるスピン緩和メカニズムと大変相似しているため、結晶性により SOI が強く依存し、単結晶構造にすることで内因性 SOI を強調できることを示唆する。

上記の結果を前半に記述した目標と関連づけてみると、本研究は以下のような意義を持つ。

第一に、本研究は金属 SOI に関する基礎物理の深い理解を探究した。

- Pt の結晶性によるスピン緩和を体系的に調べることから、EY と DP を両方考慮することによって金属におけるスピン緩和メカニズムを明確に説明した。
- Co/Pt(S)における SOT の温度依存性を測定することで、DP によるスピン緩和がエピタキシャル成長された Pt では温度を増加しても適用される可能性を示した。

以上の結果は、近年金属 SOI において挙げられた様々な議論に対する結論を提示すると共に、SOI のエンジニアリングのための基礎的理解を提案した。

第二として、結晶性による SOT を定量的に調べ、スピントロニクスデバイスへの応用可能性を提示した。

- Pt のエピタキシャル成長の概念を応用し、MgO 基板の結晶方位を制御することで Pt の結晶性が異なる垂直磁気異方性を持つ Co/Pt の成長する手法を確立した。
- エピタキシャル成長された Co/Pt 構造では結晶性から起因する CHE が存在することを観測し、CHE を取り組んだ SOT の評価法を構築した。
- また CHE は結晶方位に強く依存することから、エピタキシャル成長された系において結晶方位により SOT を制御できる可能性を実験的に示した。

上記の結果は、結晶性を利用することで SOT を変調できる新たな方法を提案しており、その定量的に評価方法を構築した研究として重要な意義を持つ。

本論文で得られた知見を踏まえ、今後の課題及び更なる研究計画を考えてみると、下記のようなことが挙げられる。

第 6 章のスピン緩和メカニズムに関する研究において、DP には Rashba SOI のみを考慮して解析を行ったが、実際は結晶方位に依存した DP の寄与の存在可能性がある。近年報告されている Pt(111)のフェルミ面上におけるスピン緩和の理論計算[1]及び第 7 章で観測された結晶方位による CHE はエピタキシャル構造上の電子の運動方向に依存したスピン緩和の可能性を示す結果となる。それを確かめるには、エピタキシャル成長された Pt のある面上に、様々な電流方向を持つ細線を作成し、量子干渉効果を測定

することで得られると考えられる。この場合細線は準一次元系( $\sim 100\text{nm}$ )を満たすほどの幅が望ましい。もし結晶方位に依存した SOI が存在するのであれば、Pt(111)面では 6 回対称のスピン緩和が観測されると予想される。また Rashba SOI の影響を取り除く必要がある場合は、厚い膜厚と薄い膜厚を有する Pt を比較することで差し引くことができる。

次に、第 6 章において Rashba SOI を用いスピン緩和の電氣的制御を試みたが、現段階では顕著な違いを観測することは困難であった。その理由としては Pt の高いキャリア密度及び Thomas-Fermi 長より厚い膜厚、それから Pt の強い SOI などが考えられる。本問題を解決するためには、より薄い Pt( $\sim 1\text{nm}$ )を成長し同様な実験を繰り返すことも考えられるが、エピタキシャル成長するために高温で Pt のスパッタリングを行う場合は平坦なフィルムが得られることは難しい。従って Ag 及び Ta などの材料を用いることでより簡単に電氣的制御が得られる可能性がある。Ag の場合室温でエピタキシャル成長が可能であり、Ta の場合は比較的平らな構造で成長される特徴がある[2,3]。また本研究で得られたスピン緩和メカニズムは Pt だけではなく金属全般に適用できることから[3]、Ag 及び Ta でより顕著な違いが観測されることが考えられる。

それから第 7 章で得られた CHE による SOT は、体系的な実験を繰り返すことによってより明らかにすることができる。第 7 章で行った一連の依存性の結果から CHE の現象は明確ではあるが、各結晶方位による SOT の変調及び磁化反転への影響を調べるためには更なる実験が必要とされる。ドット形状にすることで多磁区状態と形状磁気異方性を抑えられることがわかったため、その構造をもつ様々な結晶方位において実験を繰り返すことでより自明な依存性を得ることが可能となる。また CHE の起源を現段階では現象論として説明しているが、更なる実験から得られる依存性と理論計算によるサポートを合わせることで定量的説明できると期待される。

最後に、第 8 章で行った SOT の温度依存性はまだその議論が定性的であるため、更なる実験が必要である。第 8 章の結論において記述したように、磁化特性の定量的評価及び多結晶構造を持つ試料における実験などが考えられる。上記の一連の実験を繰り返し、室温における DP の適用可能性が明らかになれば、エピタキシャル構造の SOT のデバイスへの応用汎用性を向上させる有意義な結果となると確信する。

## Reference

- [1] N. H. Long *et al.*, Phys. Rev. B **94**, 180406(R) (2016).
- [2] T. C. Nason, L. You, and T.-M. Lu, Journal of Applied Physics **72**, 466 (1992);
- [3] H. Gamou *et al.*, Appl. Phys. Exp. **10**, 023003 (2017).